

**Auswirkungen der Wasserstoff-Zumischung  
auf die Flammenstruktur  
turbulenter stratifizierter Methan-Luft-Flammen**

Vom Fachbereich Maschinenbau  
an der Technischen Universität Darmstadt  
zur  
Erlangung des Grades eines Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.)  
genehmigte

D i s s e r t a t i o n

vorgelegt von

**Dipl.-Ing. Silvan Schneider**

aus München

Berichterstatter:	Prof. Dr. rer. nat. A. Dreizler
Mitberichterstatter:	Prof. Dr.-Ing. C. Hasse
Mitberichterstatter:	Prof. Dr.-Ing. D. Geyer
Tag der Einreichung:	04. Juli 2017
Tag der mündlichen Prüfung:	14. November 2017

Darmstadt 2017

D17



---

## Danksagung

Diese Arbeit entstand im Rahmen meiner fünfjährigen Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Reaktive Strömungen und Messtechnik der Technischen Universität Darmstadt. Mein herzlicher Dank gilt daher zuerst Prof. Dr. rer. nat. Andreas Dreizler, für die Möglichkeit der Promotion an seinem Institut. Seine Unterstützung war die Basis für diese Arbeit. Er ermöglichte mir über den gesamten Zeitraum ein freies und selbstständiges Arbeiten, das ich sehr zu schätzen weiß.

Mein weiterer Dank gilt Prof. Dr.-Ing. Christian Hasse vom Lehrstuhl für Numerische Thermofluidodynamik an der Technischen Universität Bergakademie Freiberg für die Übernahme des Koreferats und das damit zum Ausdruck gebrachte Interesse an meiner Arbeit. Mein großer Dank gilt zudem Prof. Dr.-Ing. Dirk Geyer, Fachbereich Maschinenbau und Kunststofftechnik, hda Darmstadt, für die Mitberichterstattung zu dieser Arbeit. Er war als Raman-Fellow stets zu fachlichen Diskussionen bereit und hatte immer gute Ideen, sei es zur Laborarbeit oder zur Interpretation der Ergebnisse.

Über meine gesamte Zeit am Institut habe ich das angenehme Arbeitsklima genossen. Dafür möchte ich mich bei allen Mitarbeitern des RSM und EKT bedanken. Besonders hervorheben möchte ich die „Ramänner“ M.Sc. David Butz, M.Sc. Johannes Trabold und M.Sc. Nicola Luciano. Mit Euch konnte ich immer fachliche Aspekte und auch darüber hinaus Einiges diskutieren. Unter den vielen netten Bürokollegen, möchte ich meine langjährigen Wegbegleiter Dr. Hyunchang Lee und M.Sc. Maria Angela Agizza herausgreifen. Euch sei für die tolle Atmosphäre im Büro und den vielen Kaffee gedankt. Außerdem danken möchte ich Dipl.-Ing. Andreas Ludwig für die Unterstützung im Labor und das Korrekturlesen des Manuskripts. Außerdem danke ich meinem ehemaligen Kollegen M.Sc. Konstantin Menger für den regen Gedankenaustausch zum Bau des Spektrometers. Ein weiterer Dank gilt dem Team der mechanischen Werkstatt des Fachgebiets unter Leitung von Roland Berntheisel. Die gute Zusammenarbeit und das präzise Herstellen der Prüfstandskomponenten waren die Grundlage aller Experimente.

Mein besonderer Dank gilt außerdem Rob Barlow, Bob Harmon und Gaetano Magnotti. Sie haben mir geholfen, einen großen Teil der in dieser Arbeit gezeigten Daten aufzunehmen. Neben ihrer Hilfe vor Ort an den *Sandia National Laboratories, Livermore, USA*, standen sie mir auch im Anschluss immer für Diskussionen zur Verfügung und haben viele Anstöße zur Interpretation der Ergebnisse geliefert.

Besonders danken möchte ich auch meinen Eltern für die gemeinsame Zeit sonntags und meinen Geschwistern für den familiären Rückhalt. Mein herzlicher Dank geht natürlich an meine Frau Silvi für die Geduld bei Berichten über den Prüfstand und an meine Tochter Mathilda für zuletzt viele durchgeschlafene Nächte.

Silvan Schneider

Darmstadt, den 24. November 2017

---

*Am Ende wird alles gut.*  
*Und wenn es nicht gut ist, ist es noch nicht das Ende.*  
Oscar Wilde



---

## Erklärung

Hiermit erkläre ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Dissertation selbstständig verfasst und keine anderen als die von mir angegebenen Hilfsmittel verwendet habe. Ich erkläre außerdem, dass ich bisher noch keinen Promotionsversuch unternommen habe.

Silvan Schneider

Darmstadt, den 24. November 2017

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1	Hintergrund und Motivation . . . . .	1
1.2	Stand der Forschung . . . . .	2
1.3	Zielsetzung und Struktur der Arbeit . . . . .	5
<b>2</b>	<b>Theoretische Grundlagen</b>	<b>7</b>
2.1	Verbrennung . . . . .	7
2.1.1	Chemische Reaktion und Reaktionskinetik . . . . .	7
2.1.2	Charakterisierung von Flammentypen . . . . .	8
2.1.3	Stratifizierte Verbrennung . . . . .	10
2.2	Grundlagen der Strömungsmechanik . . . . .	11
2.2.1	Bilanzgleichungen . . . . .	11
2.2.2	Turbulenz . . . . .	12
2.2.3	Streckung der Flammenfront . . . . .	14
2.3	Interaktion von Chemie und Turbulenz . . . . .	15
2.4	Erkenntnisse aus numerischen 1-D-Rechnungen . . . . .	17
<b>3</b>	<b>Messtechnische Methodik</b>	<b>21</b>
3.1	Grundlagen der verwendeten Lasermesstechnik . . . . .	21
3.1.1	Kombinierte Raman-/ Rayleigh-Spektroskopie . . . . .	22
3.1.2	Laserinduzierte Fluoreszenz (LIF) . . . . .	24
3.2	Aufbau der Prüfstände . . . . .	26
3.2.1	Brenner . . . . .	26
3.2.2	Experimenteller Aufbau an den Sandia National Laboratories . . . . .	32
3.2.3	Experimenteller Aufbau am RSM . . . . .	34
3.3	Weiterentwicklung der Prüfstands am RSM: Neudesign Transmissionsspektrometer . . . . .	35
3.3.1	Hintergrund und Anforderungen an das Transmissionsspektrometer . . . . .	35
3.3.2	Optische Auslegung . . . . .	38
3.3.3	Rotierende Shutter und Synchronisation . . . . .	42
3.3.4	Thermisches Management . . . . .	46
3.3.5	Leistungsfähigkeit des neu gebauten Spektrometers . . . . .	47
3.4	Auswertung der Messdaten . . . . .	50
3.4.1	Berechnung der Temperatur und Spezieskonzentrationen . . . . .	50
3.4.2	Vorbereitung der Eingangsdaten für die Matrix-Inversion . . . . .	56
3.4.3	Vorgehen zur Kalibration und damit erreichbare Messgenauigkeit . . . . .	57
3.4.4	Auswertung der OH-PLIF-Daten . . . . .	67
3.4.5	Berechnung der lokalen Stratifizierung . . . . .	71

<b>4 Experimentelle Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>75</b>
4.1 Laminare Methanflammen mit $H_2$ -Kodotierung . . . . .	75
4.1.1 1-D-Messung in der Flammenfront . . . . .	75
4.1.2 Reduzierte Verbrauchsgeschwindigkeit von $H_2$ und $CH_4$ im lamina-	
ren Jet-Brenner . . . . .	75
4.2 Charakterisierung der Flammenkonfigurationen MHF 5-8 . . . . .	80
4.2.1 Makroskopische Einordnung der Flammen . . . . .	80
4.2.2 Radialprofile der Skalare . . . . .	81
4.2.3 Orientierung der Flammenfront . . . . .	96
4.3 Konditionierung der hochaufgelösten Daten aus MHF 5-8 . . . . .	98
4.3.1 Bestimmung der Messposition für die hochaufgelösten Daten . . . .	98
4.3.2 Konditionierung auf das Äquivalenzverhältnis . . . . .	100
4.3.3 Konditionierung auf die Stratifizierung und das Äquivalenzverhältnis	108
<b>5 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>115</b>
<b>A Darstellung des neu gebauten Transmissionsspektrometers</b>	<b>119</b>
<b>B Radialprofile der Massenbrüche von <math>CO_2</math> und <math>H_2O</math> in MHF 5-8</b>	<b>121</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>124</b>

# Tabellenverzeichnis

3.1	Ausgewählte Objektive für das Spektrometer . . . . .	38
3.2	Kanäle der einzelnen Spezies auf der Raman-Kamera . . . . .	51
3.3	Zusammensetzung der Kalibrationsgase . . . . .	58
3.4	Exemplarische Größen für driftenden Parameter . . . . .	65
3.5	Repräsentative Unsicherheiten der verwendeten Messtechnik . . . . .	67
4.1	Makroskopische Beurteilung von MHF 5-8 . . . . .	80
4.2	Gefundene Messpositionen für die hochaufgelösten Daten. . . . .	100
4.3	Anzahl der Flammenfronten für die Auswertung der Stratifizierung . . . .	109

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Energiediagramm einer chemischen Elementarreaktion. . . . .	8
2.2	Orientierung der Reaktionszone zum Gradienten des Äquivalenzverhältnisses. . . . .	10
2.3	Energiekaskade turbulenter Wirbelstrukturen. . . . .	13
2.4	Streckung der Flammenfront. . . . .	14
2.5	Turbulente Brenngeschwindigkeit . . . . .	15
2.6	Regime-Diagramm . . . . .	16
2.7	Temperaturprofil und Massenbrüche . . . . .	18
2.8	Brenngeschwindigkeit und Abstand Wärmefreisetzung zu $CO_{\max}$ . . . . .	19
3.1	Energieschema Streuprozesse . . . . .	23
3.2	Streugeometrie . . . . .	24
3.3	Schnittansicht des stratifizierten Brenners . . . . .	27
3.4	Fotografien und Betriebsparameter von MHF 5-8 . . . . .	28
3.5	Schnittansicht des laminaren Jet-Brenners . . . . .	29
3.6	Schnittansicht des V-Flammen-Brenners . . . . .	30
3.7	Schnittansicht des Flachflammenbrenners . . . . .	31
3.8	Schnittansicht und Spektrum des Hencken-Brenners . . . . .	31
3.9	Aufbau Detektionseinheit Sandia . . . . .	32
3.10	Aufbau Detektionseinheit Darmstadt . . . . .	34
3.11	Schematische Skizze des optischen Aufbaus des Spektrometers . . . . .	36
3.12	Strahlengang des Streulichts im Spektrometer . . . . .	39
3.13	MTF, Siemensstern, Auflösung der Objektivkombination LG 2.1 bis LG 5 . . . . .	41
3.14	Schemaskizze Belichtungszeit schnelle Scheibe . . . . .	42
3.15	Zeitliches Schema zur Steuerung der Belichtungsfrequenz . . . . .	44
3.16	Regelschema FPGA . . . . .	46
3.17	Spektrum der Neonlampe zur Bestimmung der Dispersion . . . . .	47
3.18	Hintergrundleuchten auf dem neuen Spektrometer . . . . .	48
3.19	Regelgüte schnelle Scheibe . . . . .	49
3.20	Raman-Signal spektral aufgelöst und gebinnt . . . . .	50
3.21	Übersprechen der Raman-Kanäle von $CO_2$ und $O_2$ . . . . .	51
3.22	Rayleigh-Bild als Apparatefunktion . . . . .	52
3.23	Spektrum der Neonlampe auf der Raman-Kamera . . . . .	53
3.24	Antwortfunktionen und Übersprechen einzelner Kanäle . . . . .	54
3.25	Ergebnis der Kalibration im Flachflammenbrenner . . . . .	60
3.26	Ergebnis der Kalibration im Hencken-Brenner . . . . .	62
3.27	Ergebnis der Kalibration in der V-Flamme . . . . .	63
3.28	Variationskoeffizient der Multiplikatoren . . . . .	63
3.29	Variationskoeffizient der driftenden Parameter . . . . .	64
3.30	Flammennormalenvektor aus den OH-PLIF-Daten . . . . .	68

3.31	Sensitivitätsanalysen OH-PLIF-Messtechnik . . . . .	70
3.32	Definition der Stratifizierung . . . . .	72
3.33	Vergleich der Definitionen der Stratifizierung . . . . .	73
3.34	Vergleich der Definitionen der Stratifizierung mit der 1-D-Rechnung . . .	73
4.1	Fotografien und Schema der diffusiven Ströme in lam. Jet und V-Flamme	76
4.2	Räumliche Struktur von lam. Jet und V-Flamme . . . . .	77
4.3	Verlauf des H <sub>2</sub> -Massenbruchs in lam. Jet und V-Flamme . . . . .	78
4.4	C/H-Verhältnis in lam. Jet und V-Flamme . . . . .	78
4.5	Fotografien und Betriebsparameter von MHF 5-8 . . . . .	81
4.6	Vergleich der Favre- und Reynolds-Mittelwerte und Fluktuationen in MHF 5	83
4.7	Radialprofile der Temperatur der Flammen MHF 5-8 . . . . .	85
4.8	Radialprofile des Äquivalenzverhältnisses der Flammen MHF 5-8 . . . .	86
4.9	Radialprofile des Massenbruchs von O <sub>2</sub> der Flammen MHF 5-8 . . . . .	87
4.10	Radialprofile des Massenbruchs von CO der Flammen MHF 5-8 . . . . .	88
4.11	Radialprofile des Massenbruchs von CH <sub>4</sub> der Flammen MHF 5-8 . . . . .	89
4.12	Radialprofile des Massenbruchs von H <sub>2</sub> der Flammen MHF 5-8 . . . . .	90
4.13	H <sub>2</sub> -Massenbruch und C/H-Verhältnis der MHF bei $z = 7$ mm . . . . .	91
4.14	Massenbrüche von CO, H <sub>2</sub> , CO <sub>2</sub> und H <sub>2</sub> O in der Höhe $z = 100$ mm . . . .	96
4.15	Häufigkeitsverteilung des vertikalen Winkels der Flammennormale . . . . .	97
4.16	Lage des Messvolumens für die hochaufgelösten Daten für MHF 5-8 . . . .	99
4.17	Massenbruch der Hauptspezies im T-Raum für alle Flammen MHF 5-8 . .	101
4.18	H <sub>2</sub> -Massenbruch, konditioniert auf verschieden $\phi$ . . . . .	103
4.19	Häufigkeitsverteilung von $\phi$ , nahe an auffälligen Werten des H <sub>2</sub> -Massenbruchs	105
4.20	Massenbrüche der Hauptspezies im T-Raum, konditioniert auf alle $\phi$ . . . .	107
4.21	Histogramme über die Häufigkeit der $\phi$ in MHF 7 und 8 . . . . .	108
4.22	Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung über die Stratifizierung in MHF 5-8 .	109
4.23	Massenbrüche der Hauptspezies in MHF 7 und 8, konditioniert auf $\phi = 0,85$ und Stratifizierung . . . . .	111
4.24	Massenbrüche der Hauptspezies in MHF 7 und 8, konditioniert auf $\phi = 1,1$ und Stratifizierung . . . . .	112
A.1	Fotografie des Spektrometers . . . . .	119
A.2	CAD-Modell schnelle Scheibe . . . . .	119
A.3	CAD-Modell Spektrometer . . . . .	120
B.1	Radialprofile des Massenbruchs von CO <sub>2</sub> der Flammen MHF 5-8 . . . . .	122
B.2	Radialprofile des Massenbruchs von H <sub>2</sub> O der Flammen MHF 5-8 . . . . .	123

# Nomenklatur

Große lateinische Buchstaben		Einheit
$\dot{Q}$	Enthalpieeintrag	$\text{J}/\text{m}^3 \text{ s}$
$A$	Fläche	$\text{m}^2$
$A$	Präexponentieller Faktor des Arrhenius-Ansatzes	$\text{m}^3/\text{mol s}$
$C$	Konzentration	$\text{mol}/\text{m}^3$
$C_m$	Momentenbeiwert	—
$D$	Diffusionsterm	$\text{kg}/\text{m}^3 \text{ s}$
$Da$	Damköhler-Zahl	—
$E$	Energie	$\text{J}$
$E_a$	Aktivierungsenergie	$\text{J}/\text{mol}$
$G$	Gitterkonstante	$1/\text{m}$
$I$	Intensität	$\text{W}/\text{m}^2$
$J$	Rotationsquantenzahl	—
$Ka$	Karlovitz-Zahl	—
$Le_k$	Lewiszahl der Spezies $k$	—
$M_k$	Molare Masse der Spezies $k$	$\text{kg}/\text{mol}$
$N$	Drehzahl	$\text{U}/\text{min}$
$N$	Teilchenzahldichte	$1/\text{m}^3$
$P$	Leistung	$\text{W}$
$R$	Universelle Gaskonstante	$\text{J}/\text{mol K}$
$Re$	Reynolds-Zahl	—
$Re_t$	Turbulente Reynolds-Zahl	—
$S$	Signalintensität	—
$T$	Temperatur	$\text{K}$
$U_f$	Strömungsgeschwindigkeit	$\text{m}/\text{s}$
$V$	Vergrößerung	—
$X_k$	Molenbruch der Spezies $k$	—
$Y_k$	Massenbruch der Spezies $k$	—
$Z$	Mischungsbruch	—

Kleine lateinische Buchstaben		Einheit
$a$	Aerodynamische Streckung	$1/\text{s}$
$b$	Breite	$\text{m}$
$c_p$	Spezifische Wärmekapazität	$\text{J}/\text{kg K}$
$c_{ij}$	Koeffizientenmatrix der Antwort- und Übersprechfunktionen	—
$d$	Abstand, Durchmesser	$\text{m}$

$f$	Brennweite	m
$f$	Frequenz	1/s
$f/x$	$f$ -Zahl mit Wert $x$	—
$f_i$	Initiale Besetzungsdichte	—
$g_e$	Entartungsfaktor	—
$h$	Höhe	m
$h$	Planck'sches Wirkungsquantum	J/s
$h$	Spezifische Enthalpie	J/kg
$j_s$	Diffusiver Fluss	mol/m <sup>2</sup> s
$k$	Reaktionskoeffizient	—
$k_B$	Boltzmann Konstante	J/K
$l$	Charakteristische Länge	m
$l_0$	Integrales Längenmaß	m
$l_k$	Kolmogorov-Längenmaß	m
$n$	Normalenvektor	—
$p$	Druck	N/m <sup>2</sup>
$q$	Kinetische Energie	J
$r$	Radiale Position	m
$r$	Reaktionsgeschwindigkeit	mol/m <sup>3</sup> s
$r^*$	Relative radiale Position	m
$s_l$	Laminare Flammgeschwindigkeit	m/s
$t$	Zeit	s
$u_i$	Geschwindigkeitskomponente $i$	m/s
$v$	Geschwindigkeit	m/s
$v$	Vibrationsquantenzahl	—
$x_i$	Kartesische Koordinatenrichtung $i$	m
$z$	Axiale Position	m

### Große griechische Buchstaben

### Einheit

$\Omega$	Öffnungswinkel der Optik	rad
$\Phi(\tilde{\alpha})$	Produkt aus Transitionsmatrix und Transmissivität	s <sup>4</sup> /m <sup>2</sup>
$\Psi$	Wellenfunktion	—

### Kleine griechische Buchstaben

### Einheit

$\alpha, \beta$	Winkel	°
$\delta_t$	Flammendicke	m
$\dot{\omega}_s$	Chemischer Quellterm	kg/m <sup>3</sup> s
$\dot{\omega}_T$	Thermischer Quellterm	J/m <sup>3</sup> s
$\epsilon$	Dissipationsrate	J/kg s
$\eta$	Effizienz	—
$\kappa$	Streckungsrate	1/s
$\lambda$	Wellenlänge	m
$\lambda$	Wärmeleitfähigkeit	W/m K



---

$\nu$	Frequenz	1/s
$\nu$	Kinematische Viskosität	m <sup>2</sup> /s
$\omega$	Winkelgeschwindigkeit	rad/s
$\bar{\alpha}$	Polarisierbarkeit	A <sup>2</sup> s <sup>4</sup> /kg
$\phi$	Äquivalenzverhältnis	—
$\psi$	Gravitationspotential	J/kg
$\rho_k$	Partialdichte der Spezies $k$	kg/m <sup>3</sup>
$\sigma$	Standardabweichung	—
$\sigma$	Streuquerschnitt	m <sup>2</sup>
$\theta$	Winkel	°

### Tiefgestellte Indizes

---

ad	adiabat
L	Laser
S	Streulicht
$f$	final
$i$	initial
$s$	Scheibe
$f$	<i>forward</i> , dt. vorwärts
max	Maximum
min	Minimum
P	Pilot
R1,R2	Ring 1, Ring 2
Ram	Raman
Ray	Rayleigh
$r$	<i>reward</i> , dt. rückwärts
Br	Brennstoff
Ox	Oxidator
stöch	Stöchiometrische Mischung
$pg$	perfektes Gas
$rms$	<i>Root Mean Square</i> , dt. quadratisches Mittel
$th$	Thermisch

### Hochgestellte Indizes

---

+	Parität
'	Reynolds-Fluktuation
''	Favre-Fluktuation
$a,b,c,d$	Stoff- bzw. temperaturabhängige Potenz

### Operatoren und Symbole

---

$\Delta$	Differenz
$X \ll Y$	Übersprechen der Spezies Y auf die Spezies X

$\nabla$	Nabla-Operator
$-$	Reynolds-Mittelwert
$\sim$	Favre-Mittelwert

# Abkürzungsverzeichnis

<b>a. u.</b>	<i>arbitrary unit</i> , arbiträre Einheit
<b>bgr</b>	<i>background</i> , dt. Hintergrund
<b>BG3</b>	Hintergrundkanal 3
<b>CAD</b>	<i>Computer Aided Design</i> , dt. rechnerunterstütztes Konstruieren
<b>CCD</b>	<i>Charge Coupled Device</i> , dt. ladungsträgergekoppelte Schaltung
<b>CARB</b>	<i>California Air Research Board</i> , dt. Emissionsschutzbehörde
<b>DNS</b>	Direkte Numerische Simulation
<b>EKT</b>	Energie- und Kraftwerkstechnik
<b>FWHM</b>	<i>Full Width at Half Maximum</i> , dt. Halbwertsbreite
<b>FEM</b>	Finite-Elemente-Methode
<b>FPGA</b>	<i>Field Programmable Gated Array</i> , dt. programmierbares Logik-Gatter
<b>HR</b>	<i>Highly Resolved</i> , dt. hochaufgelöst
<b>HRR</b>	<i>Heat Release Rate</i> , dt. Wärmefreisetzungsrate
<b>hda</b>	Hochschule Darmstadt
<b>KIT</b>	Karlsruhe Institute of Technology
<b>LDA</b>	Laser-Doppler-Anemometrie
<b>LES</b>	<i>Large Eddy Simulation</i>
<b>LG</b>	Linsengruppe
<b>LIF</b>	Laserinduzierte Fluoreszenz
<b>LR</b>	<i>Low Resolved</i> , dt. niedrigaufgelöst
<b>mcs</b>	Multikomponenten-Transport unter Berücksichtigung des Soret-Effekts
<b>MHF</b>	<i>Methane Hydrogen Flame</i> , dt. Methan-Wasserstoff-Flamme
<b>MI</b>	Matrix-Inversion
<b>MTF</b>	Modulationstransferfunktion
<b>Nd:YAG</b>	Neodym-dotiertes Yttrium-Aluminium-Granat (Laser)
<b>PID</b>	Proportional Integral Differentiell
<b>PLIF</b>	Planare Laserinduzierte Fluoreszenz
<b>PWM</b>	Pulsweitenmodulation
<b>RAMSES</b>	<i>Raman Scattering Experiment Simulator</i>
<b>RMS</b>	<i>Root Mean Square</i> , dt. Quadratisches Mittel
<b>RSM</b>	Reaktive Strömungen und Messtechnik
<b>sCMOS</b>	<i>scientific Complementary Metal-Oxide-Semiconductor</i>
<b>SNR</b>	Signal-zu-Rausch-Verhältnis
<b>TU</b>	Technische Universität
<b>UV</b>	Ultraviolett
<b>WATR</b>	<i>Wavelet Adaptive Thresholding Algorithm</i>



# Kapitel 1

## Einleitung

Im folgenden Kapitel wird die vorliegende Arbeit motiviert und in einen wissenschaftlichen Kontext eingeordnet. Anschließend wird ein Überblick über die Aspekte gegeben, die in dieser Arbeit betrachtet werden.

### 1.1 Hintergrund und Motivation

Die Verbrennung kohlenwasserstoffbasierter Brennstoffe dominiert die zur menschlichen Nutzung bereitgestellte Energie. 81 % des weltweiten Primärenergiebedarfs wurden 2014 aus fossilen Energieträgern (Kohle, Erdöl und Erdgas) gedeckt [1]. Die Perspektive für die Zukunft zeigt aufgrund von Bevölkerungswachstum und wirtschaftlicher Entwicklung, vor allem der Schwellenländer, nur eine geringe Reduktion dieses hohen Anteils fossiler Ressourcen. Mit der Verbrennung einher geht die Problematik der Luftschadstoffe. Für Umwelt und Mensch schädliche Produkte wie CO, NO<sub>x</sub>, unverbrannte Kohlenwasserstoffe oder Ruß entstehen bei der Verbrennung fossiler Energieträger. Vonseiten des Gesetzgebers wird versucht, den Ausstoß dieser Schadstoffe durch Grenzwerte (z. B. Euro-Norm oder CARB) zu minimieren. Zukünftige strengere Emissionslinien sind, mindestens in Europa, politischer Konsens. Die unmittelbar mit der Verbrennung verbundenen Emissionen von CO<sub>2</sub> verursachen den globalen Klimawandel [93] mit weitreichenden negativen Auswirkungen auf die Weltbevölkerung. Im Klimavertrag von Paris 2015 kam daher ein Großteil der Nationen der Erde überein, die durch Menschen verursachte globale Erwärmung auf unter 2 °C gegenüber vorindustriellen Werten zu begrenzen. Ein weiteres Problem für die zukünftige Verwendung fossiler Energieträger erwächst aus der Limitierung der fossilen Ressourcen. Der Übergang zu erneuerbaren Energien ist alleine deshalb unabdingbar. Aus all den genannten Aspekten wird deutlich, dass die Verbrennungsforschung hinsichtlich Effizienzsteigerung und gleichzeitiger Schadstoffreduzierung ein hochrelevantes Forschungsgebiet ist.

Ein wahrscheinliches Szenario zum Übergang zu erneuerbaren Energien ist die Zumischung von Wasserstoff zu kohlenwasserstoffbasierten gasförmigen Brennstoffen. Für Erdgas wird, verursacht durch die verstärkte Schiefergasförderung, in Zukunft ein größerer Anteil an den fossilen Energieträgern prognostiziert [16]. Dies macht die Beimischung von H<sub>2</sub> umso relevanter. Durch die Substitution von fossilem CH<sub>4</sub> durch H<sub>2</sub> wird unmittelbar der CO<sub>2</sub>-Ausstoß reduziert. Wasserstoff kann, elektrolytisch erzeugt, als Zwischenspeicher zum Ausgleich von Last- und Angebotsschwankungen von Wind- und Solarenergie dienen (z. B. in Power-to-Gas-Anlagen). Thermochemisch kann Wasserstoff aus Biomasse erzeugt werden, die anderweitig nicht nutzbar wäre. Damit könnte die Konkurrenz zur Nahrungsmittelproduktion, wie sie aus anderen Verfahren zur Biogaserzeugung bekannt ist, vermieden werden. Fossiles Erdgas und Biogas können chemisch zu Wasserstoff reformiert und so

enthalpisch aufgewertet werden. Eine Mischung von kohlenwasserstoffhaltigen Brennstoffen wie  $\text{CH}_4$  mit  $\text{H}_2$  hat vor allem in der Übergangszeit ein hohes technologisches Potential für klima- und umweltfreundliche Verbrennungssysteme, da sowohl Leitungsnetze als auch die Verbrennungskraftmaschinen erst an einen Betrieb mit reinem  $\text{H}_2$  angepasst werden müssen. Leitungssysteme für Erdgas stehen bereits großflächig zur Verfügung und sind für geringe Kodotierungsgrade von  $\text{H}_2$  ohne Änderungen an der Infrastruktur bereit [70]. Erfahrung mit  $\text{H}_2$  in Pipelines besteht durch die über Dekaden angewendete Stadtgas-Verfeuerung. Anders auf der Verbrauchsseite: In aktuell bestehenden Verbrennungskraftmaschinen oder industrieller Verfeuerung liegt die akzeptable Zumischung von  $\text{H}_2$  zu  $\text{CH}_4$  dagegen meist unter 20 Vol.-% [106]. Bei höheren Graden der Kodotierung ist eine Adaptierung nötig.

Prinzipiell bringt  $\text{H}_2$  als Brennstoff viele Vorteile, aber auch einige Nachteile mit sich. Durch die ca. sieben Mal höhere Brenngeschwindigkeit von  $\text{H}_2$  im Vergleich zu  $\text{CH}_4$  besteht eine verstärkte Gefahr des Flammenrückschlags mit sicherheitskritischen Auswirkungen im Betrieb. Die große Diffusivität des  $\text{H}_2$  stellt große Herausforderungen an die Sicherheitseinrichtungen bei Speicherung und Verfeuerung in Verbrennungsanlagen. Durch die höhere adiabate Flammentemperatur von  $\text{H}_2$  im Vergleich zu  $\text{CH}_4$  werden einerseits sehr viel mehr thermische Stickoxide ( $\text{NO}_x$ ) erzeugt, andererseits wird die Verlöschgrenze zu brennstoffärmeren Gemischen ausgedehnt. Daher erscheint eine sehr magere Verbrennungsführung möglich, ohne dass die Emissionen unverbrannter Kohlenwasserstoffe und CO dabei signifikant ansteigen oder die Gefahr des Verlöschens besteht.

Vor diesem Hintergrund erscheint es sinnvoll, die Auswirkungen von  $\text{H}_2$ -Beimischung auf die Verbrennung gasförmiger Kohlenwasserstoffe zu untersuchen. Das Verständnis der Vorgänge in der Flamme ergibt sich somit als technologisch und klimarelevantes Forschungsgebiet. Diese Arbeit hat daher zum Ziel, detaillierte Informationen über den Einfluss der  $\text{H}_2$ -Kodotierung in vorgemischten  $\text{CH}_4$ /Luft-Flammen auf das makroskopische Erscheinungsbild generischer Flammen und besonders auf deren Mikrostruktur zu liefern.

## 1.2 Stand der Forschung

### $\text{H}_2$ -Kodotierung

Die systematische Analyse einer  $\text{H}_2$ -Kodotierung in turbulenten vorgemischten  $\text{CH}_4$ -Flammen zur Beschreibung des instantanen thermokinetischen Zustands ist bisher nur in geringem Umfang durchgeführt worden. Die hierfür geeignetste Messtechnik ist die kombinierte Raman- und Rayleigh-Spektroskopie, da damit Temperatur und Hauptspezieskonzentrationen mit hoher räumlicher und zeitlicher Diskretisierung simultan untersucht werden können.

In der Vergangenheit wurden zahlreiche Studien mit laserbasierten Methoden, wie der Laserinduzierten Fluoreszenz (LIF) des OH-Moleküls, und intrusiven Verfahren, wie Probeentnahmetechniken, durchgeführt. Diese Messungen hatten zum Ziel, sowohl räumlich als auch zeitlich gemittelte Größen zu bestimmen, um den Einfluss der  $\text{H}_2$ -Kodotierung zu charakterisieren. So untersuchten Jackson et al. [35] in mager vorgemischten  $\text{CH}_4$ -Gegenstromflammen den Einfluss einer  $\text{H}_2$ -Zumischung experimentell mit Laser-Doppler-Anemometrie (LDA) und in numerischen Simulationen. Die Hauptergebnisse waren das Ausweiten der mageren Verlöschgrenzen, das Heraufsetzen der maximal möglichen Flammenstreckungsraten und ansteigende Brenngeschwindigkeiten. Shy et al. [88] charakterisierten den Einfluss der Zumischung von  $\text{H}_2$  und  $\text{CO}_2$  in einer mageren  $\text{CH}_4$ -

Vormischflamme. Sie verwendeten intrusive Messmethoden zur Bestimmung des Einflusses der  $H_2$ -Kodotierung auf die turbulente Flammengeschwindigkeit. Die Autoren folgerten, dass die erhöhte  $H_2$ -Kodotierung auch bei hohen Turbulenzgraden half, die Flammenfronten zu stabilisieren.

Schefer et al. [81] untersuchten die Stabilität und das Verlöschen einer drallstabilisierten  $CH_4$ -Flamme bei Zumischung von  $H_2$ . Sie dokumentierten mittels extraktiver Messtechnik ( $CO$ ,  $NO$ ) die Reduktion der  $CO$ -Konzentration bei Zumischung von  $H_2$ . Die Autoren verwendeten Aufnahmen der Flammenluminosität und Ergebnisse der OH-PLIF-Technik, um die Flammenstruktur hinsichtlich der mageren Verlöschgrenze und der OH-Verteilungen zu bewerten. Mit 20 Vol.-%  $H_2$ -Zumischung wurde eine Verschiebung der mageren Brennbarkeitsgrenze um 15 % erreicht. Damit konnte die  $NO_x$ -Konzentration gesenkt werden.

Messungen mit kombinierter Raman-/Rayleigh-Messtechnik fanden vorrangig an nicht vorgemischten Flammen statt. Brennstoff war hier reiner  $H_2$  oder ein Gemisch aus  $H_2$  und  $CH_4$ . Ranalli und Strakey [77] führten eindimensionale Raman-Messungen zur Bestimmung von Hauptspezies und Temperaturen und OH-PLIF-Messungen in einer turbulenten nicht vorgemischten Flamme durch. Brennstoff war ein Gemisch aus je 50 Vol.-%  $H_2$  und  $N_2$ . Oxidator gelangte aus der umgebenden Luft zur Reaktionszone. Die festgestellten Ergebnisse waren eine verminderte Temperatur durch turbulenzbedingte Flammenstreckung und ein Einfluss von präferentieller Diffusion auf die Flammenstabilität. Die Autoren verglichen die Messdaten mit Strömungssimulationen, in welchen die Maximaltemperaturen aufgrund von fehlerhaften Modellannahmen in der zugrunde liegenden LES (*large eddy simulation*) überschätzt wurden.

Bergmann et al. [12] untersuchten eine nicht vorgemischte Freistrahlf Flamme aus 33 Vol.-%  $H_2$ , 22 Vol.-%  $CH_4$  und 45 Vol.-%  $N_2$ . Ziel der Untersuchung war die Beobachtung von Flammenstrukturen, präferentieller Diffusion, Verlöschung und Streckung. Die verwendete Messtechnik war die 0-D-Raman-/Rayleigh-Spektroskopie und die 2-D-LIF des OH-, CH- und NO-Moleküls. Meier et al. [65] bestätigten die Ergebnisse für die gleiche Jetflamme. Zusätzlich untersuchten sie den Einfluss einer höheren Reynolds-Zahl ( $Re = 22.800$ ). Diese hatte niedrigere NO-Werte, lokales Flammenverlöschen und einen geringeren Einfluss der präferentiellen Diffusion zur Folge.

Bis dato wurden nur wenige experimentelle Untersuchungen in vorgemischten turbulenten Flammen durchgeführt, bei denen der Brennstoff aus einem Gemisch aus  $H_2$  und  $CH_4$  bestand. Barlow et al. [8] untersuchten an einem staukörperstabilisierten vorgemischten Jetbrenner Temperatur und Hauptspezieskonzentrationen mittels 1-D-Raman-/Rayleigh-Spektroskopie. Sie beobachteten einen Anstieg des C/H-Atomverhältnisses und des lokalen Äquivalenzverhältnisses in Richtung der Rezirkulationszone. Dies wurde der präferentiellen Diffusion von  $H_2$  und  $H_2O$  in Richtung Frischgas und dessen anschließendem konvektiven Abtransport zugeschrieben. Bei zunehmender Kodotierung von  $H_2$  (bis zu 40 Vol.-%) kehrte sich die Diffusionsrichtung von  $H_2$  um und fand vorrangig von den Reaktanden hin zu den Produkten statt.

## Stratifizierung

Viele aktuelle Wärmekraftmaschinen werden in Verbrennungsregimen betrieben, in welchen das Gemisch, durch das die Flammenfront propagiert, weder ideal vorgemischt ist noch die Brennstoffe und der Oxidator komplett getrennt voneinander vorliegen (nicht vorgemischte Verbrennung). Beide Verbrennungsführungen haben eigene Vor- und Nachteile. In praktischen Verbrennungssystemen für Transport und Energiewandlung liegt häufig ein

stratifiziertes Gemisch vor [3, 61, 69, 94]. Das heißt, die Flammenfront propagiert durch ein inhomogenes Gemisch aus Brennstoff und Oxidator. Die Stratifizierung kann dabei intendiert vorliegen, um z. B. bei global magerer Verbrennungsführung Flammenstabilität zu gewährleisten, den Brennstoffverbrauch zu senken und Emissionen zu reduzieren, oder immanent durch die begrenzte Ausdehnung der Mischungszone, in der Brennstoff und Oxidator zueinander gelangen können [2, 107].

Wegen der großen Bedeutung für technische Applikationen wurden in der Vergangenheit zunehmend experimentelle Studien durchgeführt, in welchen die stratifizierte Verbrennung in generischen Brennern im Fokus stand. In folgenden Studien wurden extraktive Messmethoden verwendet: Renou et al. [78] fanden an einer turbulenten, mageren Flamme heraus, dass die Stratifizierung eine Steigerung der globalen Flammengeschwindigkeit bewirkte. Die lokal unterschiedlichen Flammengeschwindigkeiten verursachten eine verstärkte Faltung der Flamme. Pasquier et al. [71] untersuchten eingeschlossene, magere, geschichtete Flammen. Die Autoren zeigten den Einfluss lokal brennstoffreicher Bereiche auf die lokale Flammengeschwindigkeit. Robin et al. [79] führten Experimente an einer drahtstabilisierten Flamme durch. Ergebnisse dieser Studie waren eine Abnahme der Flammendicke als Folge zusätzlicher Streckung, die durch die lokal verschiedenen Flammengeschwindigkeiten verursacht wurde. Anselmo-Filho et al. [4] verglichen, ohne Intrusion der Flamme, eine stratifizierte Konfiguration mit einer rein vorgemischten. Sie beobachteten im stratifizierten Fall eine Verbreiterung der Verteilung der Flammenkrümmung und eine Zunahme der *flame surface density* (Dichte der Flammenfläche).

Kang et al. [39–41] stellten bei Vorliegen von Stratifizierung in laminaren Flammen eine Erweiterung der Brennbarkeitsgrenze ins Magere und eine höhere Brenngeschwindigkeit fest. Wärme aus einem brennstoffreicheren Bereich der Flamme unterstützte die Verbrennung sehr magerer Gemische unterhalb der theoretischen Brennbarkeitsgrenze. Lipatnikov [53] erklärte die höheren Temperaturen und die höhere Wärmefreisetzung in stratifizierten Flammen durch diesen Zustrom von Wärme vonseiten brennstoffreicher, bereits verbrannter Bereiche in der Flamme.

Eine Untersuchung des thermokinetischen Zustands in der Hauptreaktionszone wurde u. a. von Sweeney et al. [94–98] mittels kombinierter Raman-/Rayleigh-/CO-LIF-Spektroskopie durchgeführt. In diesen Studien wurde hauptsächlich ein verdrahteter Brenner mit einem zentralen Staukörper zur Erzeugung einer Rezirkulationszone realisiert. Der Staukörper führt bei dieser Brennerkonfiguration, selbst bei unverdrahteter Strömung, zu einer deutlichen Erhöhung der Komplexität des Strömungsfeldes. In weiteren Untersuchungen am gleichen Brenner wurden auch Konfigurationen mit Brennstoffreich-mager-Schichtung gefahren sowie die Drallzahl variiert [96–98]. Brennstoff war hier immer  $\text{CH}_4$ . Die Autoren führten eine Konditionierung auf das Äquivalenzverhältnis (bei dem  $\phi$ , das an der Stelle des maximalen CO-Massenbruchs vorlag) und die lokale Stratifizierung durch und fanden bei stratifizierten Bedingungen eine Erhöhung der Speziesmassenbrüche von CO und  $\text{H}_2$ . Thermische Gradienten wurden durch Stratifizierung erhöht, die *flame surface density* blieb insensitive. Später wurden die Daten unter Verwendung einer engeren Konditionierung erneut ausgewertet [37, 38]. Die dabei durchgeführte Konditionierung auf das lokale Äquivalenzverhältnis offenbarte, dass die Flammenstruktur im Temperatur-Zustandsraum hauptsächlich eine Funktion des lokal vorliegenden Äquivalenzverhältnisses war.

Untersuchungen zum Einfluss der Stratifizierung auf den thermokinetischen Zustand der Flammenfront wurden bereits an dem gleichen Brenner, wie er in dieser Arbeit verwendet wurde (vgl. Kap. 3.2.1), durchgeführt [92]. Im Vergleich zu dem oben verwendeten Brenner (Sweeney et al. [95–98]) ist der stratifizierte Brenner ohne Rezirkulationszone durch ein weniger komplexes Strömungsfeld gekennzeichnet. Brennstoff war in der genannten Studie



$\text{CH}_4$  und die Stöchiometrie global mager. Die Autoren fanden eine Sensitivität des  $\text{H}_2$ -Massenbruchs auf die lokale Stratifizierung sowohl auf der Seite der Reaktanden als auch der Produkte.

### Präferentielle Diffusion

Die Auswirkungen der präferentiellen Diffusion chemischer Spezies auf die Flammenstruktur und die Ausbreitungsgeschwindigkeit turbulenter Vormischflammen wurde in einer Vielzahl von Studien untersucht. Lipatnikov und Chomiak [52] fassten die Resultate mehrerer numerischer und experimenteller Arbeiten zusammen. Diese kamen zu dem Ergebnis, dass auch noch bei hoher Turbulenz die unterschiedliche Diffusionsgeschwindigkeit der Spezies einen Einfluss auf die Flammenstruktur haben kann. Überadiabate (engl. *super-adiabatic*) Zellen, die durch präferentielle Diffusion verursacht wurden, konnten in  $\text{H}_2$ /Luft-Flammen [11, 17, 20] und brennstoffreichen  $\text{CH}_4$ /Luft-Flammen [54, 55] nachgewiesen werden. Messungen in vorgemischten  $\text{H}_2$ /Luft-Flammen zeigten einen Einfluss der präferentiellen Diffusion auf die Form und Ausbreitungsgeschwindigkeit von Flammen [11, 17, 20]. In Simulationen der Flammen des stratifizierten Ringbrenners mit Staukörper (s. o., Veröffentlichungen von Sweeney et al. [95–98]) mittels LES konnte die gemessene präferentielle Diffusion numerisch reproduziert werden [67].

Wie bereits oben erwähnt, untersuchten Barlow et al. [8] an einem einfachen staukörperstabilisierten Brenner die präferentielle Diffusion von  $\text{H}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  aus der Rezirkulationszone in die turbulente Frischgasströmung. In einem anderen staukörperstabilisierten stratifizierten Brenner (mit zwei konzentrischen Ringströmungen) untersuchten Magnotti et al. [58] die präferentielle Diffusion bei hoher Turbulenz. Bei erhöhter Austrittsgeschwindigkeit stellten die Autoren eine Verstärkung der präferentiellen Diffusion fest, weil Rezirkulationszone und Flammenzone näher beieinander lagen. In den untersuchten Konfigurationen erhöhte sich bei großer Turbulenz die Flammendicke durch Wirbel, die in die Vorwärmzone der Flamme eindrangten.

## 1.3 Zielsetzung und Struktur der Arbeit

Diese Arbeit hat zum Ziel, detaillierte Informationen über den Einfluss der  $\text{H}_2$ -Kodotierung in vorgemischten  $\text{CH}_4$ /Luft-Flammen auf das makroskopische Erscheinungsbild generischer (laminarer und turbulenter) Flammen und besonders auf deren Mikrostruktur zu liefern. Die experimentellen Ergebnisse sollen eine Datenbasis generieren, die zur Validierung numerischer Modelle bereitsteht. Der Einfluss der lokalen Stratifizierung, generiert durch sowohl global magere als auch brennstoffreiche Gemische, soll im Hinblick auf ein tieferes Verständnis der Vorgänge auf Ebene der Mikrostruktur der Flamme untersucht werden.

Die vorliegende Arbeit untergliedert sich in folgende Kapitel:

- In Kapitel 2 werden die theoretischen Grundlagen technischer reaktiver Strömungen beschrieben. Relevante Aspekte der chemischen Reaktion, der Fluidmechanik und deren Schnittpunkte werden besprochen. In einem kurzen Ausblick wird auf die numerischen 1-D-Simulationen eingegangen, die zum Vergleich mit den Messdaten verwendet wurden.
- In Kapitel 3 werden die Grundlagen der verwendeten Lasermesstechnik im Überblick erläutert. Die genutzten Brenner und Prüfstände, an denen die Messungen durchge-

führt wurden, werden vorgestellt. Ein Unterkapitel geht auf die Weiterentwicklung des Prüfstandes ein. Darin wird die Entwicklung und der Aufbau eines neuen Transmissionsspektrometers beschrieben. Anschließend erfolgt eine detaillierte Darstellung der durchgeführten Schritte zur Auswertung der Messdaten. Die Kalibration des Messsystems und die Berechnung der lokalen Stratifizierung wird aufgezeigt.

- Kapitel 4 enthält die experimentellen Ergebnisse und deren Interpretation. Die Messergebnisse, aufgenommen in den Flammen zweier laminarer Brenner und des in vier unterschiedlichen Konfigurationen betriebenen stratifizierten Brenners, werden dargestellt und diskutiert.
- In Kapitel 5 schließlich werden die wichtigsten Erkenntnisse dieser Arbeit zusammengefasst. Es wird ein kurzer Ausblick auf interessante weiterführende Untersuchungen im Kontext der  $\text{H}_2$ -Kodotierung gegeben.

# Kapitel 2

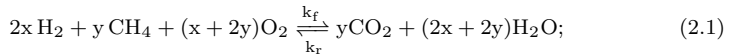
## Theoretische Grundlagen

Im folgenden Kapitel werden die Grundlagen der Verbrennung und Fluidmechanik besprochen. Die Wechselwirkung von chemischer Reaktion und Turbulenz wird betrachtet.

### 2.1 Verbrennung

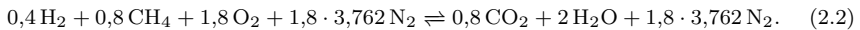
#### 2.1.1 Chemische Reaktion und Reaktionskinetik

Verbrennung ist die exotherme Redoxreaktion eines Brennstoffes mit einem Oxidator. Bei der technischen Verbrennung ist der Brennstoff häufig ein Kohlenwasserstoff oder Wasserstoff, der Oxidator Sauerstoff. Die vollständige Umsetzung eines Brennstoffgemisches, bestehend aus  $\text{CH}_4$  und  $\text{H}_2$ , mit  $\text{O}_2$  läuft nach folgendem Reaktionsschema ab [103]:



$x$  und  $y$  sind ganzzahlige Variablen, die von der Brennstoffmischung abhängig sind,  $k$  ist die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante für die Vorwärtsreaktion (Index f) und Rückreaktion (Index r). Im Kontext der Verbrennung ist  $k_f \gg k_r$ .

Die Verbrennungsexperimente in dieser Arbeit fanden ausschließlich mit Luft als Oxidator statt. Die Zusammensetzung der Luft wird vereinfacht zu 21 Vol.-%  $\text{O}_2$  und 79 Vol.-%  $\text{N}_2$  angenommen. Für den Molenbruch  $X_i$ , der den molaren Anteil der Spezies  $i$  am Anteil aller Spezies angibt, gilt damit:  $X_{\text{N}_2} = 3,762 \cdot X_{\text{O}_2}$ . Bei der häufig verwendeten Mischung von 20 Vol.-%  $\text{H}_2$  und 80 Vol.-%  $\text{CH}_4$  des Brennstoffes verändert sich Gl. 2.1 zu:



Die Reaktionsgleichungen 2.1 f. beschreiben nur die übergeordnete Brutto-Reaktion [103]. Auf molekularer Ebene läuft die Reaktion von Edukten zu Produkten über eine Vielzahl von Elementarreaktionen ab. Reaktionsmechanismen für reale Kraftstoffe können über 2000 Elementarreaktionen enthalten [74]. Die Reaktionsgeschwindigkeit  $r$  bezogen auf die geschwindigkeitsbestimmende Reaktion von  $\text{CH}_4$  errechnet sich für die Reaktionsgleichung 2.2 zu

$$r = \frac{d[\text{CH}_4]}{dt} = -k_f [\text{H}_2]^a \cdot [\text{CH}_4]^b \cdot [\text{O}_2]^c. \quad (2.3)$$

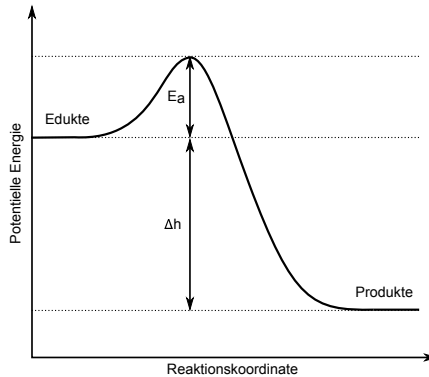
Die eckigen Klammern repräsentieren die Konzentrationen der jeweiligen Spezies. Die Exponenten  $a, b, c$  sind die Reaktionsordnungen bezüglich der jeweiligen Spezies.

Die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante  $k_f$  ist stark nicht linear von der Temperatur abhängig. Ihre Bestimmung kann nach dem Arrhenius-Ansatz erfolgen [101]:

$$k_f = AT^d \cdot \exp\left(-\frac{E_a}{R \cdot T}\right). \quad (2.4)$$

Der präexponentielle Faktor  $A$  besitzt nur eine geringe Temperaturabhängigkeit, die über Multiplikation mit  $T^d$  berücksichtigt wird. Daher ist der Exponent  $d$  der Temperatur  $T$  häufig nahe null und die Temperaturabhängigkeit von  $k_f$  entsteht allein durch den exponentiellen Faktor. Darin ist  $E_a$  die Aktivierungsenergie (vgl. Abb. 2.1) und  $R$  die universelle Gaskonstante.

Die Interpretation des Arrhenius-Ansatzes für eine Gasmischung sagt Folgendes aus: Die Wahrscheinlichkeit, dass beim Stoß von Reaktionspartnern die Aktivierungsenergie  $E_a$  überschritten wird, steigt mit zunehmender Temperatur. In diesem Fall kommt es zum Aufbrechen der molekularen Bindung und zur chemischen Reaktion. Dabei wird die Reaktionsenthalpie  $\Delta h$  freigesetzt, die man sich bei technischen Verbrennungsprozessen zunutze macht. Der energetische Ablauf einer Elementarreaktion ist schematisch in Abb. 2.1 dargestellt.



**Abbildung 2.1:** Energiediagramm einer chemischen Elementarreaktion mit der Aktivierungsenergie  $E_a$  und der frei werdenden Enthalpie  $\Delta h$ , nach [103].

## 2.1.2 Charakterisierung von Flammentypen

Verbrennungsprozesse finden in verschiedenen Regimen statt. Im folgenden Abschnitt wird auf die Klassifizierung von Flammentypen eingegangen, die sich zur Einordnung etabliert hat.

Eine grundlegende Unterscheidung des Flammentyps erfolgt über den Grad der Vermischung der Brenngase: Werden Brennstoff und Oxidator erst gemischt und danach verbrannt, spricht man von vorgemischter Verbrennung. Werden Brennstoff und Oxidator

getrennt voneinander zur Flammenfront befördert, spricht man von nicht vorgemischter Verbrennung. In diesem Fall finden die Mischung und die Reaktion gleichzeitig statt. Es sind auch Abstufungen zwischen vorgemischter und nicht vorgemischter Verbrennungen möglich. Eine partiell vorgemischte Flamme liegt z. B. vor, wenn der Brennstoff kurz vor dem Brenner in den Luftstrom injiziert wird und die Mischung zum Zeitpunkt der Entzündung noch nicht abgeschlossen ist.

Eine weitere Gliederungsmöglichkeit des Flammentyps im Kontext der vorgemischten Verbrennung erfolgt über das Verhältnis von Brennstoff zu Oxidator. Die Stöchiometrie des Gemischs aus Brennstoff und Luft wird über das Äquivalenzverhältnis  $\phi$  beschrieben [103]:

$$\phi = \frac{(X_{\text{Ox}}/X_{\text{Br}})_{\text{stöch}}}{X_{\text{Ox}}/X_{\text{Br}}}. \quad (2.5)$$

Dabei bezeichnet  $X$  den Molenbruch des Oxidators (Ox) bzw. des Brennstoffs (Br). Die rechte Seite von Gl. 2.5 wird zu eins, wenn in der Mischung gerade soviel  $\text{O}_2$  vorliegt, dass der Brennstoff komplett verbraucht wird. Die Mischung ist dann stöchiometrisch (stöch). Die Nomenklatur für die Einteilung von vorgemischten Verbrennungsprozessen erfolgt nach Gl. 2.6 über das Äquivalenzverhältnis  $\phi$ .

$$\phi \begin{cases} < 1 \rightarrow \text{magere Verbrennung} \\ = 1 \rightarrow \text{stöchiometrische Verbrennung} \\ > 1 \rightarrow \text{brennstoffreiche Verbrennung} \end{cases} \quad (2.6)$$

Die Berechnung des Äquivalenzverhältnisses erfolgt in dieser Arbeit über die atomaren Anteile ( $X_{\text{C}}$ ,  $X_{\text{H}}$ ,  $X_{\text{O}}$ ), die sich aus den Stoffmengenanteilen der einzelnen Spezies ergeben (vgl. Gl. 2.7).

$$\phi = \frac{2 X_{\text{C}} + 0,5 X_{\text{H}}}{X_{\text{O}}} = \frac{X_{\text{CO}_2} + 2 X_{\text{CH}_4} + X_{\text{CO}} + 0,5 X_{\text{H}_2\text{O}} + 0,5 X_{\text{H}_2}}{X_{\text{CO}_2} + X_{\text{O}_2} + 0,5 X_{\text{CO}} + 0,5 X_{\text{H}_2\text{O}}}. \quad (2.7)$$

Die nach Gl. 2.7 berechneten Werte für  $\phi$  liegen sehr nahe an den nach Bilger (Index B) [13] über den Mischungsbruch  $Z$  definierten Äquivalenzverhältnissen:

$$\phi_{\text{B}} = \frac{Z}{1-Z} \frac{1 - Z_{\text{stöch}}}{Z_{\text{stöch}}} \approx \phi. \quad (2.8)$$

Neben der Unterscheidung nach der Stöchiometrie werden Verbrennungsregime auch nach laminarer und turbulenter Verbrennung untergliedert. Diese Charakterisierung bezieht sich auf das strömungsmechanische Regime, in dem die Reaktion stattfindet. Während bei laminarer Verbrennung das Fluid in Schichten geordnet und stationär strömt, dominiert bei turbulenter Verbrennung dessen wirbelbehaftete, stochastische Bewegung (vgl. Kap. 2.2.2). Durch die Interaktion von chemischer Reaktion und Strömung bei turbulenter Verbrennung ist eine gemeinsame Betrachtung beider Phänomene notwendig. Dies wird in Kap. 2.3 näher erläutert.

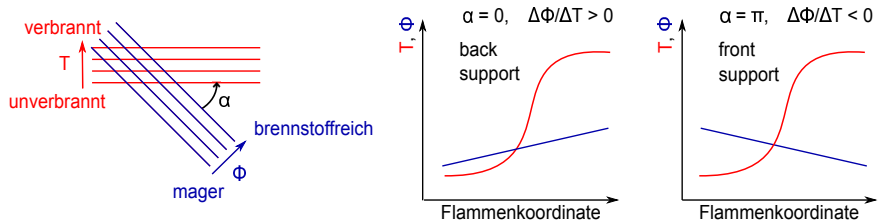
Ein weiteres Kriterium zur Charakterisierung von technischer Verbrennung besteht nach der Art der Flammenstabilisierung. Um eine stabile Flamme auszubilden, muss das nachströmende Frischgas kontinuierlich durch Wärme- und Radikalzufuhr entzündet werden.

Gleichzeitig muss die Ausströmgeschwindigkeit hoch genug sein, um ein Rückschlagen der Flamme zu verhindern. Die Art der Flammenstabilisierung ist stark an die Geometrie des Brenners und an das vorherrschende strömungsmechanische Regime gekoppelt. Die Gemischzusammensetzung und damit die Brenngeschwindigkeit sind ebenfalls maßgebliche Einflussgrößen (vgl. Kap. 2.4). In technischen Verbrennungssystemen beruht die Flammenstabilisierung häufig auf der Ausbildung einer Rezirkulationszone [51, 56], z. B. hinter einem Strömungshindernis oder durch eine verdrehte Strömung. Heiße Abgase können stromaufwärts gelangen, und die Strömungsgeschwindigkeit reduziert sich. Dadurch sind an der Grenzschicht zwischen Frischgas und Abgas in der Rezirkulationszone die Voraussetzungen erfüllt, dass sich das nachströmende Gas durch hohe Temperaturen und ggf. eine große Radikalkonzentration kontinuierlich entzünden kann. Die Verwendung von Pilotflammen ist eine weitere Möglichkeit, Flammen zu stabilisieren. Dabei entzündet das heiße Abgas einer kleinen, lokal stabilisierten Flamme die Hauptflamme. Auch wenn die Strömungsgeschwindigkeit lokal auf null abgesenkt wird, z. B. in einer Stagnationsebene (Gegenstrombrenner) oder an einer Prallplatte, ist eine Flammenstabilisierung möglich. In dieser Arbeit wurden Experimente hauptsächlich am stratifizierten Brenner durchgeführt (vgl. Kap. 3.2.1). Dessen Flamme wird durch das Abgas einer zentralen vorgemischten Pilotflamme entzündet. Die Pilotflamme selbst stabilisiert sich in der Rezirkulationszone hinter einem ringförmigen Flammenhalter.

### 2.1.3 Stratifizierte Verbrennung

In praktischen Verbrennungssystemen für Transport und Energiewandlung liegt häufig ein stratifiziertes Gemisch vor [3, 61, 69, 94]. Das heißt, die Flammenfront propagiert durch ein inhomogenes Gemisch aus Brennstoff und Oxidator. Die Stratifizierung kann dabei intendiert vorliegen, um z. B. bei global magerer Verbrennungsführung Flammenstabilität zu gewährleisten, den Brennstoffverbrauch zu senken und Emissionen zu reduzieren, oder immanant durch die begrenzte Ausdehnung der Mischungszone, in der Brennstoff und Oxidator zueinander gelangen können [2, 107].

Die Charakterisierung der Stratifizierung erfolgt einerseits über ihre räumliche Ausdehnung. Ändert sich das Äquivalenzverhältnis  $\phi$  auf Skalen ähnlich der Größenordnung der Flammendicke, ist die lokale Flammenstruktur stark beeinflusst. Ein anderer Parameter zur Bewertung der Stratifizierung ist die Lage des Gradienten von  $\phi$  und der Reaktionszone zueinander.



**Abbildung 2.2:** Definition der Stratifizierung über den Winkel  $\alpha$  zwischen dem Reaktionsfortschritt (linkes Bild, rot markiert) und dem Gradienten des Äquivalenzverhältnisses  $\phi$  (linkes Bild, blau markiert). Schemaskizzen für Flammen mit *back support* (Mitte) und *front support* (rechts), nach [48].

Wie in Abb. 2.2 gezeigt, kann die Flamme in Richtung magerer Mischung ( $\alpha = 0$ , engl. *back supported flame*) oder in Richtung brennstoffreicherer Mischung propagieren ( $\alpha = \pi$ ,

engl. *front supported flame*). Diese Einteilung beruht auf der höheren Brenngeschwindigkeit brennstoffreicherer Zonen (bei global mageren Bedingungen), die sich bei *back support* hinter der Flammenfront befinden und von dort die Verbrennung „unterstützen“. Der dominierende Fall ist dabei die Propagation in Richtung mageren Gemischs (d. h. *back support*) [48, 62]. Dieser Fall tritt durch Effekte der präferentiellen Diffusion, die das lokale  $\phi$  innerhalb der Flammenfront ändern, auch in einer eigentlich perfekt vorgemischten ungestreckten laminaren 1-D-Flamme auf.

## 2.2 Grundlagen der Strömungsmechanik

Im folgenden Abschnitt wird ein Überblick über die wichtigsten Gleichungen und Begriffe zur mathematischen Beschreibung reagierender Strömungen gegeben. Für Herleitung und tiefergehende Erläuterungen wird auf die Grundlagenliteratur für Strömungsmechanik (z. B. [90]) und Turbulenz (z. B. [75]) verwiesen.

### 2.2.1 Bilanzgleichungen

Reagierende Strömungen können über einen Satz abhängiger Bilanzgleichungen beschrieben werden. Zusätzlich werden Materialgesetze wie z. B. für Wärme- und Stofftransport eingebunden. Im Folgenden werden diese Bilanzgleichungen unter Annahme einiger vereinfachender Annahmen beschrieben.

Die Kontinuitätsgleichung gibt die Erhaltung der Gesamtmasse in differentieller Form an:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u_i)}{\partial x_i} = 0. \quad (2.9)$$

Dabei ist  $\partial \rho / \partial t$  die zeitliche Änderung der Dichte und  $u_i$  die lokale Geschwindigkeit, unterteilt in ihre drei orthogonalen Komponenten.

In Verbrennungsprozessen werden chemische Spezies verbraucht und neu erzeugt. Daher existiert ein Quellterm  $\dot{\omega}_s$  in Gl. 2.10, in der die Bilanzierung aller beteiligter chemischen Spezies  $s$  vorgenommen wird:

$$\frac{\partial \rho_s}{\partial t} + \frac{\partial(\rho_s u_i)}{\partial x_i} + \frac{\partial j_{s,i}}{\partial x_i} = \dot{\omega}_s. \quad (2.10)$$

Dabei steht  $\rho_s$  für die Partialdichte der jeweiligen Spezies  $s$ ,  $j_s$  für den diffusiven Strom. Speziestransport kann sowohl über Konvektion (zweiter Term in Gl. 2.10) als auch Diffusion (dritter Term in 2.10) erfolgen.

In der Navier-Stokes-Gleichung wird die Impulsbilanz, hier unter Annahme eines Newton'schen Fluids mit konstanter kinematischer Viskosität  $\nu$ , aufgestellt:

$$\rho \frac{Du_j}{Dt} = \frac{\partial p}{\partial x_j} + \nu \frac{\partial^2 u_j}{\partial x_i \partial x_i} - \rho \frac{\partial \psi}{\partial x_j}. \quad (2.11)$$

Hierbei steht  $p$  für den lokalen Druck und  $\psi$  für das wirkende Gravitationspotential.

Die letzte notwendige Gleichung zur Beschreibung reagierender Strömungen ist die Energieerhaltungsgleichung, die für die Enthalpie  $h$  als Erhaltungsgröße gelöst wird:

$$\frac{\partial(\rho h)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho h u_j)}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( c_p \rho D_\lambda \frac{\partial T}{\partial x_j} \right) + \dot{\omega}_T + \dot{Q}. \quad (2.12)$$

Auch für die Enthalpie existiert ein Konvektionsterm (zweiter Term in Gl. 2.12) und ein Diffusionsterm (dritter Term in Gl. 2.12). Dabei steht  $c_p$  für die spezifische Wärmekapazität und  $D_\lambda$  für den thermischen Diffusionskoeffizienten ( $p = \text{konst.}$ ). Mit  $\dot{\omega}_T$  wird die Wärmefreisetzung und mit  $\dot{Q}$  der Enthalpieeintrag berücksichtigt.

Die thermische Zustandsgleichung idealer Gase,

$$p = \rho \frac{R}{M} T, \quad (2.13)$$

beschreibt den Zusammenhang der thermischen Zustandsgrößen eines Gases. Verwendet werden die universelle Gaskonstante  $R$  und die mittlere molare Masse des Systems  $M$ .

An dieser Stelle wird auch die Definition der Lewis-Zahl der Spezies  $s$  gezeigt:

$$Le_s = \frac{\lambda/c_p}{\rho D_s} = \frac{\text{Wärmeleitung}}{\text{diff. Stofftransport}}. \quad (2.14)$$

Dabei repräsentiert  $\lambda$  die Wärmeleitfähigkeit,  $c_p$  die spezifische Wärmekapazität und  $D$  den Massendiffusionskoeffizienten. Die Lewis-Zahl vergleicht die Diffusionsgeschwindigkeiten von Wärme und Masse. Sie ist für verbrennungsrelevante Spezies und Gemische häufig nahe eins. Bei  $H_2$  ist die Massendiffusion jedoch deutlich schneller als die Wärmeleitung:  $Le_{H_2} \approx 0,3$  [74].

## 2.2.2 Turbulenz

In einer turbulenten Strömung variiert das Geschwindigkeitsfeld in Raum und Zeit signifikant und unregelmäßig. Dreidimensionale Verwirbelungen treten über viele Größenskalen hinweg auf. Eine wichtige dimensionslose Kennzahl zur Einordnung der Turbulenz einer Strömung ist die Reynolds-Zahl [90]:

$$Re = \frac{u \cdot l}{\nu} = \frac{\text{Trägheitskräfte}}{\text{Zähigkeitskräfte}}. \quad (2.15)$$

Dabei steht  $u$  für die Geschwindigkeit,  $l$  für eine charakteristische Länge (z. B. den Rohrdurchmesser) und  $\nu$  für die kinematische Viskosität. Oberhalb einer Reynolds-Zahl von  $Re \approx 2300$  schlägt eine laminare Strömung in eine turbulente um, die dann durch ihren wirbelbehafteten, stochastischen Charakter gekennzeichnet ist. Eine konkrete Vorhersage von Strömungsgrößen mittels der Navier-Stokes-Gleichung (vgl. Gl. 2.11) weicht damit einer Wahrscheinlichkeitsaussage.

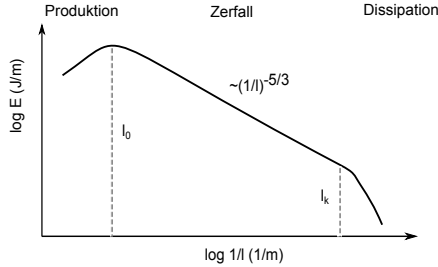
In turbulenten Strömungen liegen Wirbelstrukturen verteilt über viele Größenordnungen vor. Sie besitzen je nach Größe der Struktur  $l$  einen unterschiedlichen Energiegehalt  $E$ . Das Modell des Energiespektrums ist in Abb. 2.3 gezeigt. Im Bereich großer Strukturen, links



von  $l_0$  (integrales Längenmaß), entsteht aufgrund von kleinen Strömungsinstabilitäten Turbulenz. Große Wirbelstrukturen, die die maximale Ausdehnung  $l_0$  besitzen, zerfallen durch Zähigkeitskräfte kaskadenartig in immer kleinere Wirbel. Der Energiegehalt ist in diesem Bereich proportional zur Strukturgröße  $l$  und nimmt mit der Steigung  $(1/l)^{-5/3}$  ab. Unterschreitet die Wirbelgröße das kleinst mögliche Längenmaß (Kolmogorov-Längenmaß  $l_k$ , Gl. 2.16), dissipiert die Energie vollständig in Wärme des Fluids. Hier benötigt der Wirbel für eine halbe Umdrehung mehr Zeit als die Diffusion für die Länge eines Wirbel-durchmessers. In diesem Fall existiert der Wirbel nicht mehr. Das Kolmogorov-Längenmaß  $l_k$

$$l_k = \left( \frac{\nu^3}{\epsilon} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (2.16)$$

definiert diese Wirbelgröße. Hierin bezeichnet  $\nu$  die kinematische Viskosität und  $\epsilon$  die Dissipationsgeschwindigkeit.



**Abbildung 2.3:** Energiespektrum turbulenter Wirbelstrukturen nach [75]. Bereiche der Wirbel-Produktion, des -Zerfalls und der -Dissipation sind eingezeichnet.

Wie oben beschrieben, sind die instantanen Strömungsgrößen bei Präsenz von Turbulenz Zufallsvariablen. Daher hat es sich in der mathematischen Beschreibung turbulenter Strömungen als zweckmäßig erwiesen, die Strömungsgrößen in Mittelwert und Fluktuationen aufzuspalten. Diese sog. Reynolds-Zerlegung erzeugt beispielsweise für die Geschwindigkeit den Zusammenhang:

$$u_i(x_j, t) = \overline{u_i}(x_j, t) + u'_i(x_j, t). \quad (2.17)$$

Dabei entspricht  $\overline{u_i}$  der mittleren Geschwindigkeit und  $u'_i$  den Fluktuationen der Geschwindigkeit. Durch die in Verbrennungsprozessen typischen großen Dichteunterschiede hat sich die dichtegewichtete Mittelung etabliert. Dabei wird jede instantane Strömungsgröße vor der Mittelung mit der Dichte  $\rho$  multipliziert und durch die mittlere Dichte  $\bar{\rho}$  normiert. Danach ergibt sich für die Geschwindigkeit analog zu Gl. 2.17 die sog. Favre-Zerlegung

$$u_i(x_j, t) = \tilde{u}_i(x_j, t) + u''_i(x_j, t) \quad (2.18)$$

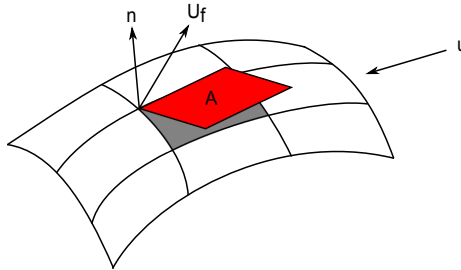
in Favre-Mittel ( $\tilde{u}_i$ ) und Favre-Fluktuation ( $u''_i$ ).

### 2.2.3 Streckung der Flammenfront

In Verbrennungsumgebungen liegt häufig ein inhomogenes Strömungsfeld vor. Auch bei perfekter Vormischung der Brenngase und laminarer Strömung lassen Phänomene wie Flammen-Verlöschen, -Stabilisierung und -Abheben darauf schließen, dass die Brenngeschwindigkeit keine konstante Größe ist. Verursacht wird die veränderte Brenngeschwindigkeit durch das vorliegende Strömungsfeld, das auf die Flamme mit einer aerodynamischen Streckung (engl. *strain*) einwirkt. Ein Beispiel hierfür ist die Flamme an einem Gegenstrombrenner, die eine positive Streckung erfährt. Das heißt, das Flammenelement wird gedehnt. Zusätzlich beeinflusst auch die Krümmung der Flammenfront (engl. *curvature*), wie sie beispielsweise in der Flamme eines Bunsenbrenners vorliegt, die Brenngeschwindigkeit. Zum Phänomen der Flammenstreckung sind zahlreiche grundlegende Veröffentlichungen erschienen [18, 63, 105], die zeigen, dass *strain* und *curvature* gemeinsam zur gesamten Streckung (engl. *stretch rate*)

$$\kappa = \frac{1}{A} \frac{dA}{dt} = -n \cdot \nabla \times (u \times n) + (U_f \cdot n)(\nabla \cdot n) \quad (2.19)$$

der Flammenfront beitragen [50]. Dabei bezeichnet  $A$  ein Flammenflächenelement, dessen räumliche Ausdehnung sich zeitlich ändert. Es bewegt sich mit der Geschwindigkeit  $U_f$  in einem Strömungsfeld  $u$ .  $n$  repräsentiert den Normalenvektor des Flammenelements  $A$ . In Abb. 2.4 ist eine schematische Darstellung der Flammenfront in einem Strömungsfeld gezeigt.



**Abbildung 2.4:** Schematische Darstellung des Flammenelements  $A$  (rot), mit der Geschwindigkeit  $U_f$  und seinem Normalenvektor  $n$  im Strömungsfeld  $u$ , nach [50].

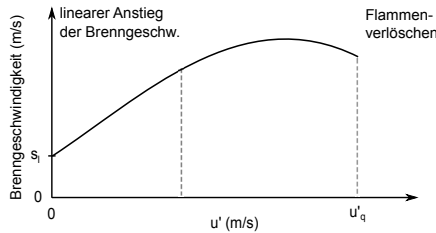
Gl. 2.19 zeigt die zwei Quellen der Streckung einer Flamme: Der erste Summand repräsentiert die Inhomogenität des Strömungsfeldes (durch  $u$ ) und die Krümmung (durch Variation von  $n$ ). Der zweite Summand trägt zur Streckung durch Instationarität (d. h. eine Bewegung) des Flammenelements selbst bei. Diese ist für die Streckung aber nur dann relevant, wenn auch eine Flammkrümmung vorliegt, da sonst  $\nabla \cdot n = 0$  und der zweite Summand zu null wird [50].

In turbulenten Flammen liegt eine Vielzahl von Streckungsraten vor. Abhängig von der lokal und instantan vorliegenden Strömung, kann ein Flammenelement hier stark gekrümmt und aerodynamisch gestreckt sein.

## 2.3 Interaktion von Chemie und Turbulenz

Ein Großteil der technischen Verbrennungssysteme wie Fahrzeug-Motoren oder Flugtriebwerke sind wegen der notwendigen hohen Energiedichte für den Betrieb bei turbulenter Verbrennung vorgesehen. In diesem Verbrennungsregime kommt es zu einer Deformation der Flammenfront und zu verstärkten Mischungsprozessen durch Eindringen von Wirbelstrukturen in die Flamme. Dadurch wird die Flammenfläche vergrößert, und der Umsatz des Brennstoffes kann in einem kleineren Volumen stattfinden. Erreichen die Zeit- und Längenmaße der turbulenten Strömung jedoch die Größenordnung der chemischen Reaktionszeit und der Flammendicke, entsteht eine direkte Interaktion zwischen chemischer Reaktion und Turbulenz.

Als Maß für den erhöhten Umsatz in turbulenter Verbrennung kann die turbulente Brenngeschwindigkeit herangezogen werden [53]. Sie ist schematisch in Abb. 2.5 über die Magnitude der Fluktuationen der Strömungsgeschwindigkeit  $u'$  aufgetragen.

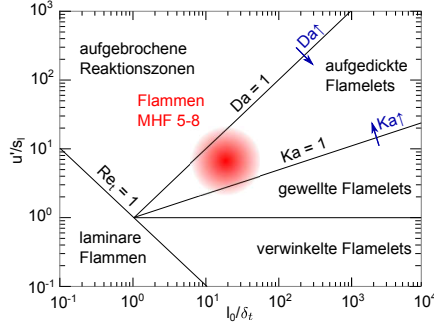


**Abbildung 2.5:** Turbulente Brenngeschwindigkeit schematisch aufgetragen über die Fluktuationen der Strömungsgeschwindigkeit  $u'$ , nach [53]. Eingezeichnet ist die laminare Brenngeschwindigkeit  $s_l$  und die der Wert der Fluktuationen  $u'_q$ , ab dem Flammenverlöschen eintritt (engl. *quenching*).

Bei aufkommender Turbulenz erhöht sich die Brenngeschwindigkeit ausgehend von der laminaren Brenngeschwindigkeit  $s_l$  zunächst linear mit  $u'$ . Steigt  $u'$  weiter, stagniert die turbulente Brenngeschwindigkeit und nimmt dann ab, bevor die Flamme ab einem kritischen Wert von  $u'_q$  verlöscht. Hier trennen die großen Fluktuationen potentielle Reaktionspartner und führen durch die schnelle Durchmischung von kalten Edukten mit heißen Produkten zu einem Verlöschen der Flamme (engl. *quenching*).

Im Regime-Diagramm (nach Borghi und Peters [15, 72], vgl. Abb. 2.6) werden anhand des Geschwindigkeitsverhältnisses  $u'/s_l$  (Geschwindigkeitsfluktuationen/laminare Brenngeschwindigkeit) und des Verhältnisses der Längenskalen  $l_0/\delta_t$  (integrales Längenmaß/laminare Flammendicke) Verbrennungsregime definiert.

Innerhalb dieser Regime, die durch die Geraden bei den Kennzahlen  $Re_t = 1$ ,  $Da = 1$  und  $Ka = 1$  voneinander abgetrennt sind, verhalten sich die lokalen Flammenfrontabschnitte (engl. *flamelets*) ähnlich. Nach der *Flamelet*-Modellvorstellung kann die Flammenfront als Ensemble vieler kleiner laminarer Flammen betrachtet werden. Der Bereich, in dem diese Modellvorstellung uneingeschränkt angewendet werden kann, liegt im unteren rechten Bereich in Abb. 2.6. Die im Diagramm verwendeten Kennzahlen sind wie folgt definiert.



**Abbildung 2.6:** Regime-Diagramm zur Kategorisierung der Vormischverbrennung. Die in dieser Arbeit vermessenen Flammen (MHF 5-8, vgl. Kap. 4.2) befinden sich abgeschätzt im rot markierten Bereich.

Mithilfe der Turbulenz-Reynolds-Zahl  $Re_t$

$$Re_t = \frac{l_0 \sqrt{2q}}{\nu} \begin{cases} < 1 \rightarrow \text{laminar} \\ > 1 \rightarrow \text{turbulent} \end{cases} \quad (2.20)$$

ist der Umschlag einer laminaren in eine turbulente Strömung beschreibbar. Er findet bei Überschreiten von  $Re_t = 1$  zu größeren  $Re_t$  statt. In Gl. 2.20 bezeichnet  $l_0$  das integrale Längenmaß und  $q$  die kinetische Energie, die sich aus den Geschwindigkeitsfluktuationen berechnet ( $q = 0,5 \cdot u'^2$ ).

Die Damköhler-Zahl  $Da$  beschreibt das Verhältnis der Zeitskala der makroskopischen Strukturen zur Zeitskala der chemischen Reaktion [103]:

$$Da = \frac{l_0 \cdot s_t}{u' \cdot \delta_t}. \quad (2.21)$$

Für  $Da < 1$  (oberhalb der winkelhalbierenden Gerade  $Da = 1$  in Abb. 2.6) benötigt die chemische Reaktion mehr Zeit als die konvektiven Prozesse. Das heißt, die turbulenten Wirbel wechselwirken direkt mit der Flammenstruktur, die in diesem Bereich stark verbreitert ist. Nach der Modellvorstellung kann hier nicht mehr von einer Flammenfront gesprochen werden. Bei  $Da \gg 1$  ist die chemische Reaktion deutlich schneller als es die turbulenten Prozesse sind.

Eine weitere verwendete Kennzahl ist die Karlowitz-Zahl

$$Ka = \frac{\delta_t^2}{l_k^2}, \quad (2.22)$$

die das Verhältnis der Zeitskala der laminaren Flamme zur Zeitskala der kleinsten Strukturen (sog. Kolmogorov-Zeitskala) angibt. Wie in Gl. 2.22 wird sie häufig über das quadratische Verhältnis der entsprechenden Längenskalen (Flammendicke  $\delta_t$  und Kolmogorov-Längenmaß  $l_k$ ) angegeben [72]. Bei  $Ka > 1$  und  $Da > 1$  (vgl. Abb. 2.6 zwischen den Geraden bei  $Ka = 1$  und  $Da = 1$ ) ist das integrale Zeitmaß größer als die chemische

Reaktionszeit und das Kolmogorov-Längenmaß kleiner als die Dicke der Flammenfront. Dies bedeutet nach der Modellvorstellung, dass kleine Wirbel bis in die Vorwärmzone der Flammenfront eindringen können und diese aufdicken. Bei  $Ka < 1$  ist die Flammendicke kleiner als es die kleinsten Wirbelstrukturen sind. Hier kann die turbulente Strömung die Flammenfront nur großskalig deformieren ( $u'/s_l < 1$ ) bzw. stark verformen und sog. Taschen herausreißen ( $u'/s_l > 1$ ).

Die in dieser Arbeit vermessenen turbulenten Flammen (MHF 5-8, vgl. Kap. 4.2) lassen sich in Abb. 2.6 hauptsächlich in den Bereich der aufgedickten *flamelets* einordnen. Dieser Bereich ist rot markiert. Bisher wurden keine Geschwindigkeitsfelder für die Flammenkonfigurationen MHF 5-8 gemessen. Daher beruht die Einordnung der Flammen in das Regime-Diagramm aus Abschätzungen aus Geschwindigkeitsmessungen in ähnlichen Flammen [85]. Die Größen für die Flammendicke  $\delta_{t,\phi=0,85} \approx 440 \mu\text{m}$  und die laminare Brenngeschwindigkeit  $s_{l,\phi=0,85} \approx 0,34 \text{ m/s}$  sind laminaren numerischen Simulationen entnommen (vgl. Kap. 2.4).

## 2.4 Erkenntnisse aus numerischen 1-D-Rechnungen

Die einfachste Flammenkonfiguration stellt eine vorgemischte, stationäre, eindimensionale, laminare Flamme dar. Für diesen Fall reduzieren sich die in Kap. 2.2.1 gezeigten Bilanzgleichungen auf ein lineares Anfangswertproblem [74], das durch die Temperatur, die Mischung und die Strömungsgeschwindigkeit bestimmt ist. Diese Gleichungen lassen sich numerisch ohne die Verwendung modellierter Terme lösen.

Die Betrachtung derartig einfacher Flammenkonfigurationen eignet sich zum Verständnis des Aufbaus der Flammenstruktur und als Vergleichsfall für komplexe, turbulente Flammen. Die im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Flammenkonfigurationen wurden alle mit dem Programm Cantera [31] und dem GRI 3.0 Mechanismus [33] berechnet. Dieser Mechanismus enthält 52 Spezies und 325 Elementarreaktionen. Es wurden Multi-komponententransport mit eigener Diffusion für alle Spezies und der Soret-Effekt (mcs) berücksichtigt.

Die drei berechneten Flammenkonfigurationen waren:

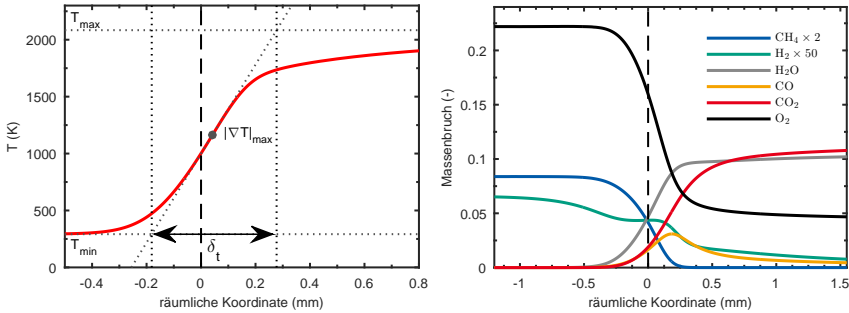
- Eine (ungestreckte) frei propagierende Flamme zur Bestimmung der laminaren Brenngeschwindigkeit in Flammen, bei welchen der Brennstoff aus einem Gemisch aus  $\text{CH}_4$  und  $\text{H}_2$  bestand. Diese Rechnungen wurden auch zur Kalibration (vgl. Kap. 3.4.3) des Messsystems und zum Vergleich der experimentellen Messergebnisse in zwei laminaren Flammen verwendet (vgl. Kap. 4.1).
- Eine Gegenstromflamme mit aerodynamischen Streckungsraten (d. h. *strain*, nach [87]) zwischen  $50 \text{ 1/s} < a < 1000 \text{ 1/s}$  mit einem Anteil von 20-Vol.%  $\text{H}_2$  am Brennstoff zum Vergleich mit den turbulenten Flammenkonfigurationen MHF 5-8 (vgl. Kap. 4.2).
- Eine Gegenstromkonfiguration ( $a = 1000 \text{ 1/s}$ , nach [87]), die die Bedingungen in den Flammen MHF 5-8 am Übergang der Abgase des Pilotbrenners zum unverbrannten Gemisch aus Ring 1 nachstellten (vgl. Kap. 4.2.2 Abb. 4.13). Auch hier wurden die Ergebnisse der 1-D-Rechnung zur Einordnung der experimentellen Messdaten verwendet.

### Erkenntnisse über die Flammenstruktur

In Abb. 2.7 ist die Struktur einer ungesteckten laminaren 1-D-Flamme anhand des räumlichen Verlaufs der Temperatur (links) und der Massenbrüche der Hauptspezies (rechts) gezeigt. Das eingestellte Äquivalenzverhältnis beträgt  $\phi = 0,85$ . Aus dem Verlauf der Temperatur kann nach [74] die Flammendicke

$$\delta_t = \frac{T_{\max} - T_{\min}}{|\nabla T|_{\max}} \quad (2.23)$$

bestimmt werden.

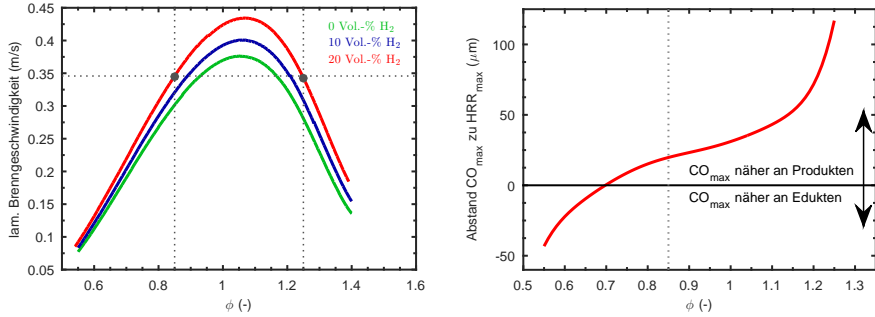


**Abbildung 2.7:** Räumliche Verteilung der Temperatur (links) und der Massenbrüche der Hauptspezies (rechts) in einer 1-D-Flamme ( $\phi = 0,85$ ,  $T_{\min} = 300$  K, Anteil  $\text{H}_2$  am Brennstoff 20 Vol.-%, ungesteckt). Die vertikale schwarz gestrichelte Linie markiert die Position bei  $T = 1000$  K. Im Temperaturprofil (links) sind schematisch die Flammendicke, die in diesem Fall  $\delta_t \approx 440 \mu\text{m}$  beträgt, und die zur Ermittlung nach Gl. 2.23 nötigen Größen eingezeichnet.

### Erkenntnisse zur Bestimmung von Betriebsparametern und zur Datenauswertung

In Abb. 2.8 (links) ist die laminare Brenngeschwindigkeit aus der Berechnung einer frei propagierenden Flamme dargestellt. Es wird deutlich, dass bereits bei Kodotierungsgraden von 20 Vol.-%  $\text{H}_2$  zu  $\text{CH}_4$  die Brenngeschwindigkeit im Maximalwert bei  $\phi \approx 1,06$  um 16 % im Vergleich zu reinem Methan zunimmt. Damit verändert sich die Charakteristik der Verbrennung erheblich. Die maximale Flammentemperatur (nicht gezeigt) erhöht sich im selben Vergleich dagegen nur um 0,5 %.

Mittels der berechneten laminaren Brenngeschwindigkeiten (vgl. Abb. 2.8, links) wurden die Betriebsparameter der turbulenten Flammen MHF 5-8 (vgl. Kap. 3.2.1 und 4.2) definiert: Die Äquivalenzverhältnisse in Ring 1 und 2 des stratifizierten Brenners wurden so gewählt, dass die Brenngeschwindigkeiten des brennstoffreichen Gemisches in Ring 1 ( $\phi_{R1} = 1,25$ ) und des Gemischs mit dem mittleren Äquivalenzverhältnis aus Ring 1 und 2 ( $\phi_{R1,R2} = 0,85$ ) identisch waren:  $s_{l,\phi=0,85} = s_{l,\phi=1,25} = 0,344$  m/s. Die schwarzen Punkte in Abb. 2.8 (links) markieren diese Positionen im Diagramm. Damit ergab sich für das Äquivalenzverhältnis in Ring 2:  $\phi_{R2} = 2\phi_{R1,R2} - \phi_{R1} = 0,45$ . Eine detaillierte Begründung für diese Stufung der Stöchiometrie wird in Kap. 4.2 gegeben.



**Abbildung 2.8:** Laminare Brenngeschwindigkeit (links) verschiedener Gemische aus H<sub>2</sub> und CH<sub>4</sub> bestimmt aus der Simulation einer frei propagierenden Flamme. Räumlicher Abstand zwischen der Position der maximalen CO-Konzentration und der maximalen Wärmefreisetzungsrate (engl. *heat release rate*, HRR) (rechts) bei einem Anteil von H<sub>2</sub> am Brennstoff von 20 Vol.-%. Daten aus einer 1-D-Gegenstromrechnung ( $\alpha = 1000$  1/s). Die grau gepunktete vertikale Linie markiert das globale mittlere Äquivalenzverhältnis ( $\phi = 0,85$ ) für alle in dieser Arbeit untersuchten MHF-Konfigurationen. Hier beträgt der Abstand ca. 16  $\mu\text{m}$ .

In Abb. 2.8 (rechts) ist der räumliche Abstand zwischen der Position der maximalen CO-Konzentration und der maximalen Wärmefreisetzungsrate (engl. *heat release rate*, HRR) (rechts) gezeigt. Die räumliche Lage der maximalen CO-Konzentration ist, anders als die von  $\text{HRR}_{\text{max}}$ , messtechnisch über CO-LIF und CO-Raman sehr gut erfassbar und wurde deshalb in dieser Arbeit als Substitut für  $\text{HRR}_{\text{max}}$  verwendet. Die Position der maximalen CO-Konzentration wurde zur Bestimmung der lokalen Stratifizierung herangezogen (vgl. Kap. 3.4.5). Die Darstellung in Abb. 2.8 (rechts) ermöglicht eine Quantifizierung des dabei gemachten Fehlers. Das globale mittlere Äquivalenzverhältnis war für alle MHF-Konfigurationen  $\phi = 0,85$  (vgl. Abb. 3.4 in Kap. 3.2.1). Hier beträgt der Abstand zwischen dem Ort maximaler CO-Konzentration und maximaler Wärmefreisetzungsrate  $d \approx 16 \mu\text{m}$  und damit lediglich ca. 3,5 % der Flammendicke. In brennstoffreicheren Gemischen steigt der Abstand auf bis zu 16 % der Flammendicke (bei  $\phi = 1,2$ ). Nach Berücksichtigung dieser Fehlerquelle zusammen mit dem Bewusstsein der Limitierung laminarer Rechnung als Vergleich für turbulente stratifizierte Verbrennung, wurde die Lage des CO-Maximums trotzdem als bester verfügbarer Indikator für den Ort, an dem entscheidende chemische Reaktionen stattfanden, bewertet.





# Kapitel 3

## Messtechnische Methodik

Im folgenden Kapitel wird die messtechnische Methodik der durchgeführten Experimente besprochen. Dazu wird zunächst der theoretische Hintergrund der verwendeten laserspektroskopischen Methoden (Raman-/ und Rayleigh-Spektroskopie und Laserinduzierte Fluoreszenz (LIF) der Moleküle CO und OH) erläutert. Im zweiten Teil wird auf den Aufbau der Prüfstände, an denen die Messungen durchgeführt wurden, eingegangen. Darin werden alle verwendeten Brenner in ihrem Aufbau gezeigt. Zudem wird die Anlagentechnik, bestehend aus Anregungs- und Detektionsseite, der Prüfstände besprochen. Dies war zum einen das Raman-Labor an der *Combustion Research Facility* der Sandia National Laboratories, USA (Experimente zu MHF 5-8, Ergebnisse in Kap. 4.2 und 4.3) und zum anderen der Raman-/ Rayleigh-Prüfstand am Institut für Reaktive Strömungen und Messtechnik (RSM) der TU Darmstadt (Experimente zu laminarem Jet und vertikaler Flamme, Ergebnisse vgl. Kap. 4.1). Ausgehend vom beschriebenen Prüfstand in Darmstadt, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein neues Transmissionsspektrometer designet und implementiert. Davon handelt der folgende Abschnitt. Das Kapitel schließt mit der Beschreibung der Auswertung der laserspektroskopisch erzeugten Daten. Der Fokus liegt auf der Berechnung der Temperatur und der Spezieskonzentrationen, die mittels kombinierter Raman-/ Rayleigh-/CO-LIF-Spektroskopie gemessen wurden. Zusätzlich wird die Bestimmung des Flammennormalenvektors aus den OH-PLIF-Daten und die Berechnung der lokalen Stratifizierung besprochen.

### 3.1 Grundlagen der verwendeten Lasermesstechnik

Im Kontext der Verbrennungsforschung hat sich die Verwendung laseroptischer Messverfahren etabliert. Dies liegt an den großen Vorteilen dieser Technik wie einem hohen zeitlichen und räumlichen Auflösungsvermögen, der Möglichkeit nicht invasiv zu messen und an der Option viele verbrennungsrelevante Größen zu erfassen.

Allen verbreiteten lasermesstechnischen Verfahren ist gemein, dass sie auf der Wechselwirkung von Licht und Materie beruhen. Deren Prinzipien sollen hier nur sehr kurz umrissen werden. Für tiefere Details wird auf Grundlagenliteratur verwiesen (z. B. [5, 24]). Die Licht-Materie-Wechselwirkung wird durch die Quantenmechanik beschrieben, in der Licht sowohl die Eigenschaften eines Teilchens als auch einer Welle einnehmen kann. Andererseits besitzen danach auch massebehaftete Teilchen Wellencharakter, deren Impuls kann wie die Energie eines Photons nur diskrete (d. h. quantisierte) Energiezustände annehmen. Für die im Kontext dieser Arbeit verwendeten Messmethoden sind die Energiezustände, die Moleküle einnehmen können, relevant. Die Gesamtenergie eines Moleküls, bestehend aus chemisch gebundenen Atomen, kann in erster Näherung in einen elektronischen, einen vibratorischen und einen rotatorischen Anteil unterteilt werden (vgl. Abb. 3.1 in Kap. 3.1.1). Vereinfacht betrachtet beruhen die im Folgenden besprochenen

Messtechniken auf der Änderung dieser quantisierten Energiezustände der Moleküle unter Absorption und messbarer Emission von Licht. Die theoretischen Grundlagen der Strahlungsführung dieses emittierten Lichts durch Optiken sowie die Detektion über CCD-Kameras wird hier nicht weiter besprochen. Dazu wird auf Grundlagenliteratur verwiesen (z. B. [34]).

### 3.1.1 Kombinierte Raman-/ Rayleigh-Spektroskopie

Mittels der nicht resonanten Raman-/ Rayleigh-Spektroskopie werden im Rahmen dieser Arbeit die Temperatur und Hauptspezieskonzentrationen ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2$ ) anhand der Signalstärke  $S$  des Streulichts in Gasgemischen gemessen. Die spektroskopischen Grundlagen sind der Literatur entnommen [6, 21, 30, 86]. Dabei wird folgende grundlegende Beziehung ausgenutzt. Das gemessene Rayleigh-Signal ist proportional zur Teilchenzahldichte  $N$  im Probervolumen. Für die Temperatur  $T$  bestimmt aus der Rayleigh-Streuung gilt damit

$$T_{\text{Ray}} \propto 1/S_{\text{Ray}}. \quad (3.1)$$

Zur quantitativen Bestimmung der Teilchenzahldichte der chemischen Spezies  $j$  aus dem Raman-Signal gilt

$$N_i \propto S_{\text{Ram},j}. \quad (3.2)$$

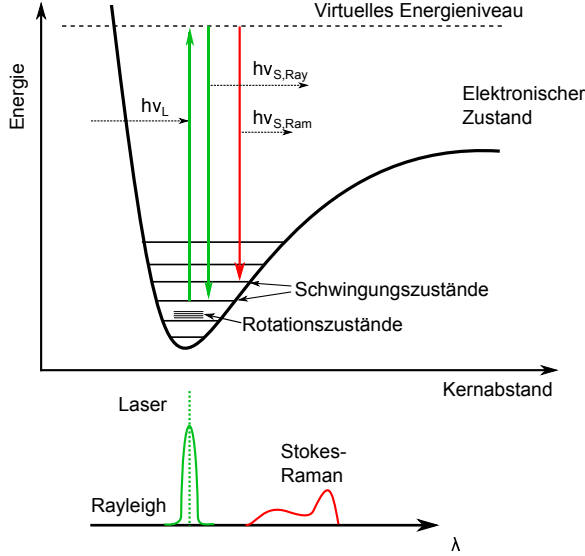
Während das Laserlicht das Probervolumen durchquert, kommt es mit endlicher Wahrscheinlichkeit zur Streuung der Photonen an Gasmolekülen. Als Rayleigh-Streuung bezeichnet man dabei die elastische Streuung, bei der das gestreute Licht die gleiche Frequenz besitzt, die das eingestrahlte Licht hatte. Gibt es einen Energieübertrag zwischen Photon und Molekül, ist das gestreute Licht frequenzverschoben. Dieser Prozess wird als Raman-Streuung bezeichnet. Das Molekül ändert beim Übergang aus einem initialen Zustand  $i$  in einen finalen Zustand  $f$  seinen Energiegehalt um die Energiedifferenz

$$\Delta E = E_f - E_i = h\Delta\nu = h \cdot (\nu_L - \nu_S). \quad (3.3)$$

Hierin bezeichnet  $\nu_L$  die Frequenz des Laserlichts,  $\nu_S$  die Frequenz des Streulichts und der Proportionalitätsfaktor  $h$  das Planck'sche Wirkungsquantum. Das gestreute Photon muss daher in seiner Frequenz um  $\Delta\nu$  verschoben sein. In Abb. 3.1 ist schematisch der energetische Ablauf der Rayleigh-Streuung sowie der rotverschobenen Raman-Streuung (Stokes), bei der das gestreute Photon eine niedrigere Frequenz als das eingestrahlte Photon besitzt, gezeigt. Das einfallende Photon hebt das Molekül auf ein virtuelles Energieniveau. Nach infinitesimal kurzer Lebensdauer fällt das Molekül in seinen Ausgangszustand (Rayleigh) bzw. einen energetisch höheren Zustand (Stokes-Raman) zurück.

Mathematisch lässt sich die Signalstärke  $S$  des Streuprozesses an der Spezies  $j$  beim Übergang vom initialen Zustand  $i$  in den finalen Zustand  $f$  wie folgt quantitativ beschreiben:

$$S_{j,f \leftarrow i} = \frac{\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega} f_{\leftarrow i}(j, T, \nu_L)}{h\nu_{S,f \leftarrow i}} \cdot E_L \Omega l \eta(h\nu_{S,f \leftarrow i}) \cdot X_j N(T, p). \quad (3.4)$$



**Abbildung 3.1:** Energieschema (oben) und Wellenlänge des Streulichts (unten) des elastischen (Rayleigh) und inelastischen (Raman) Streuprozesses, nach [24]. Ein Photon der Energie  $h\nu_L$  hebt das Molekül auf ein virtuelles Energieniveau. Aus diesem fällt das Molekül unter Emission eines Photons auf das ursprüngliche Energieniveau ( $h\nu_{S,Ray}$ ) oder auf ein anderes Schwingungs- und/ oder Rotationsniveau ( $h\nu_{S,Ram}$ ) zurück.

Der erste Term in Gl. 3.4 enthält den temperaturabhängigen differentiellen Streuquerschnitt ( $\partial\sigma/\partial\Omega$ ) für die chemische Spezies  $j$  und Anregung mit Licht der Frequenz  $\nu_L$ .  $h\nu_{S,f\leftarrow i}$  repräsentiert die Energie des Streulichts. Der zweite Term in Gl. 3.4 bezieht sich auf die Apparatur und enthält die Pulsenergie des Lasers  $E_L$ , den Öffnungswinkel der Sammeloptik  $\Omega$  sowie die Länge  $l$ , aus der gestreute Photonen gesammelt werden. Die frequenzabhängige Detektionseffizienz  $\eta$  beinhaltet die Quanteneffizienz des Detektors sowie den Photonendurchsatz durch die Optiken. Der dritte Term in Gl. 3.4 bestimmt über den Stoffmengenanteil  $X$  der Spezies  $j$  die Zielgröße der Teilchenzahldichte  $N$  im Probevolumen. Die Frequenzen und Intensitäten der Spektren für jedes Molekül sind somit über den ersten Term in Gl. 3.4 festgelegt. Der darin enthaltene differentielle Streuquerschnitt

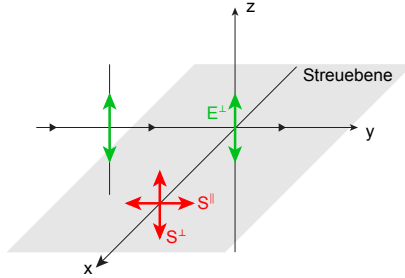
$$\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega}_{f\leftarrow i}(j, T, \nu_L) = \frac{(2\pi)^4}{45} f_i(T) \nu_{S,f\leftarrow i}^4 \Phi_{f\leftarrow i}(\bar{\alpha}) \quad (3.5)$$

wird maßgeblich beeinflusst von der Funktion  $\Phi$  (Transitionsmoment) und der relativen temperaturabhängigen Besetzungsdichte  $f_i$ , die sich aus der Boltzmann-Verteilung

$$f_i(T) = \frac{g_e \exp\left(-\frac{E_i}{k_B T}\right)}{\sum_i g_e \exp\left(-\frac{E_i}{k_B T}\right)} \quad (3.6)$$

für den initialen Energiezustand  $E_i$  beschreiben lässt. Hierin stehen  $k_b$  für die Boltzmann-Konstante,  $g_e$  für den Entartungsfaktor (Anzahl der Sätze von Quantenzahlen mit der gleichen Energie) und  $T$  für die Temperatur. Der Nenner in Gl. 3.6 repräsentiert die Zustandssumme über alle möglichen Energiezustände des Moleküls. Der Entartungsfaktor  $g_e$  hängt von der Geometrie des Moleküls ab. Im Rahmen der Spektrensimulation in dieser Arbeit (vgl. Kap. 3.4.1) wurden nur die folgenden Raman-Übergänge auf der Stokes-Seite berücksichtigt. Diese waren für  $\text{CO}_2$   $\Delta v_1 = 1$  (symmetrische Streckung) und  $\Delta v_2 = 2$  (Oberschwingung der Biegung), die in einer Fermi Resonanz interagieren. Dabei ist  $\Delta J = 0, \pm 1, \pm 2$ . Für  $\text{O}_2$  wurden die Übergänge  $\Delta v = 1$  bei  $\Delta J = 0, \pm 1, \pm 2$  betrachtet. Für  $\text{CO}$ ,  $\text{N}_2$  und  $\text{H}_2$  wurden die Übergänge  $\Delta v = 1$  bei  $\Delta J = 0, \pm 2$  einbezogen. Bei  $\text{H}_2$  gingen zusätzlich die rein rotatorischen Übergänge ( $\Delta v = 0, \Delta J = 2$ ) mit ein. Für  $\text{H}_2\text{O}$  wiederum wurden  $\Delta v_1 = 1$  (symmetrische Streckung) und  $\Delta v_3 = 1$  (symmetrische Biegung) berücksichtigt.

In allen Messaufbauten war das einfallende Laserlicht linear polarisiert und die Detektionsoptiken standen im Laborkoordinatensystem horizontal und orthogonal dazu angeordnet. In Abb. 3.2 ist die geometrische Anordnung des Laserstrahls ( $E^\perp$ ), der Streuebene sowie der dazu senkrecht  $S^\perp$  und parallel polarisierten Anteile des Streulichts  $S^\parallel$  gezeigt.



**Abbildung 3.2:** Schemaskizze der Polarisation des gestreuten Lichts  $S$  in der Streuebene (grau) bei Einfall von senkrecht polarisiertem Laserlicht  $E^\perp$ .

Der letzte Faktor in Gl. 3.5 ( $\Phi$ ) gibt die Wahrscheinlichkeit dafür an, dass ein Photon mit einer bestimmten Polarisation gestreut und detektiert wird.  $\Phi$  ist eine Funktion der molekularen Polarisierbarkeit  $\bar{\alpha}$  und ergibt sich bei linear polarisiertem Anregungslicht zu

$$\Phi_{f \leftarrow i}(\bar{\alpha}) = T^\perp \langle \Psi_f | \bar{\alpha}_{zz} | \Psi_i \rangle^2 + T^\parallel \langle \Psi_f | \bar{\alpha}_{yz} | \Psi_i \rangle^2. \quad (3.7)$$

Hierin steht  $\Psi$  für die Wellenfunktion des initialen Zustands  $i$  und des finalen Zustands  $f$ .  $T$  bestimmt die Durchlässigkeit der Optiken abhängig von der Polarisation des Streulichts (senkrecht bzw. parallel). Im Kontext der verwendenden Messaufbauten sind nur die Komponenten  $\bar{\alpha}_{zz}$  (verantwortlich für  $S^\perp$ ) und  $\bar{\alpha}_{yz}$  (verantwortlich für  $S^\parallel$ ) des Polarisierbarkeitstensors  $\bar{\alpha}$  relevant (vgl. Abb. 3.2).

### 3.1.2 Laserinduzierte Fluoreszenz (LIF)

In der Verbrennungsforschung ist die laserinduzierte Fluoreszenz ein bewährtes spektroskopisches Verfahren zur Bestimmung von Temperaturen, Konzentrationen und Mischungsbrüchen [19, 24, 45, 60]. Die folgenden nur kurz erläuterten Grundlagen sind der

genannten Literatur entnommen. Für tiefergehende Details wird auf diese Quellen verwiesen. Da es sich bei der LIF um einen resonanten Prozess handelt, bei dem ein schmalbandiger Laser auf spezifische Absorptionsübergänge eingestellt wird, ist die Messtechnik zu meist nur speziesspezifisch verwendbar. Das Grundprinzip ist dabei, dass ein Molekül durch Absorption eines Photons auf ein höheres energetisches Niveau gehoben wird. Von diesem geht es nach kurzer Verweilzeit (ca. 1 ns bis 10 ns) und ggf. strahlungsloser Übergänge unter spontaner Emission von Licht wieder in den Grundzustand über. Diese Lichtemission charakteristischer Wellenlänge wird als Fluoreszenz bezeichnet.

### LIF des CO-Moleküls

Mittels laserinduzierter Fluoreszenz wurde die Teilchenzahldichte der CO-Moleküle bestimmt. Diese ist zwar auch mittels Raman-/ Rayleigh-Spektroskopie zugänglich (vgl. Kap. 3.1.1), aber dabei aufgrund der geringen Konzentrationen und der spektralen Nähe zum überwiegend vorliegenden  $N_2$  fehlerbehaftet. Messtechnisch bietet sich daher die gleichzeitige Bestimmung von CO über LIF an. Prinzipiell gilt dabei für die Signalstärke der Fluoreszenz  $S_{CO-LIF}$ :

$$N_{CO} \propto S_{CO-LIF}. \quad (3.8)$$

Im Kontext dieser Arbeit wurde die Zwei-Photon-LIF verwendet. Die Anregung erfolgte mit einem UV-Laser bei  $\lambda = 230,1$  nm. Unter Absorption von zwei Photonen ging CO aus dem Grundzustand in den zweiten elektronisch angeregten Zustand über:

$$B^1\Sigma^+(v' = 0) \leftarrow\leftarrow X^1\Sigma^+(v'' = 0). \quad (3.9)$$

Die Emission des Fluoreszenzlichts erfolgte aus dem Übergang

$$B^1\Sigma^+(v' = 0) \rightarrow A^1\Pi(v'' = 1) \quad (3.10)$$

über die Angström-Bande. Detektiert wurde das Fluoreszenzlicht im Bereich  $480 \text{ nm} < \lambda < 488 \text{ nm}$ .

Einflussfaktoren auf die quantitative Messung von CO mittels LIF können Konkurrenzprozesse wie die Stoßlöschung, d. h. der strahlungslose Übergang des elektronisch angeregten CO durch Kollision mit anderen Gasmolekülen, die Prädissoziation und die Photoionisation sein. Zudem sind einige Banden des  $B \rightarrow A$  Übergangs des CO von der laserinduzierten Fluoreszenz des Moleküls  $C_2$  überlagert.  $C_2$  tritt in lokal brennstoffreichen Flammen auf. Da die Lebensdauer der angeregten Zustände von  $C_2$  unter denen des CO liegt, kann durch Anpassung der elektronisch gesteuerten Belichtungszeit (engl. *gating*) der Kameras eine Überlagerung vermindert werden. Für die quantitative Bestimmung von CO ist zudem die Kenntnis der Temperatur (und der Dichte) im Probenvolumen notwendig. Diese Größen sind über die simultan durchgeführte Raman-/Rayleigh-Messung verfügbar.

### LIF des OH-Radikals

Das Hydroxyl-Radikal (OH) kann als wichtige intermediäre Spezies in Verbrennungsprozessen als Marker für den Ort der Flammenfront verwendet werden. Durch seine überwiegende Bildung in der Hauptreaktionszone eignet sich der steilste Gradient der OH-Konzentration als Indikator für diese Zone. Im Kontext dieser Arbeit wurde die OH-LIF mit zwei gekreuzten Laserlichtschnitten zweidimensional (d. h. planar, OH-PLIF)

verwendet. Das Ziel war dabei die Bestimmung des Flammennormalenvektors, der die dreidimensionale Lage der Flammenfront im Raman-/Rayleigh-/CO-LIF-Probevolumen kennzeichnet. Prinzipiell gilt dabei für die Signalstärke der Fluoreszenz  $S_{\text{OH-PLIF}}$  :

$$N_{\text{OH}} \propto S_{\text{OH-PLIF}}. \quad (3.11)$$

Ein Laser mit  $\lambda = 283,5 \text{ nm}$  wurde zur Anregung der  $Q_1(8)$ -Linie verwendet. Unter Absorption eines Photons ging das OH-Radikal aus dem Grundzustand in den ersten elektronisch angeregten Zustand über:

$$A^2\Sigma^+(v''=0) \leftarrow X^2\Pi(v'=1) \quad (3.12)$$

Die Emission des Fluoreszenzlichts erfolgte sowohl über die Q-Zweige der (1,1)-Bande bei 313 nm als auch der (0,0)-Bande bei 308 nm.

Aufgrund des komplexen elektronischen Aufbaus von OH ist dessen quantitative Bestimmung stark fehlerbehaftet. Zusätzlich wären eine Kenntnis der Temperatur und die Konzentration der wichtigsten Quenchpartner, über die eine Stoßlöschung erfolgen kann, notwendig. Für die Bestimmung des Flammennormalenvektors war die semiquantitative Messung ohne Korrektur auf o. g. Einflussgrößen ausreichend.

## 3.2 Aufbau der Prüfstände

### 3.2.1 Brenner

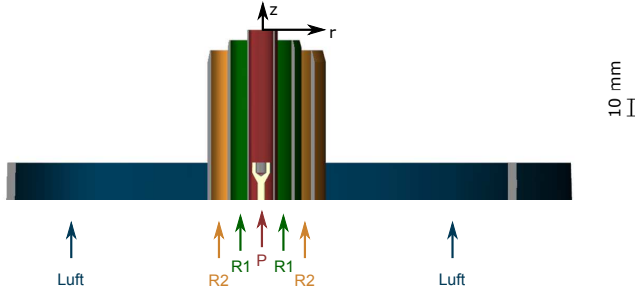
Im folgenden Abschnitt werden die in dieser Arbeit verwendeten Gas-Brenner beschrieben. Diese schließen die Brenner für die Zielflammen (stratifizierter Brenner, laminarer Jet-Brenner und vertikaler Flammenbrenner) und die Kalibrationsbrenner (Flachflammenbrenner und Hencken-Brenner) ein. Für den stratifizierten Brenner wird das Vorgehen zur Festlegung der Betriebsparameter besprochen.

#### Stratifizierter Brenner

In Abb. 3.3 ist eine Schnittansicht des stratifizierten Brenners [76] dargestellt. An diesem Brenner wurden alle Experimente zu den Flammenkonfigurationen MHF 5-8 (vgl. Kap. 4.2 und Kap. 4.3), die in dieser Arbeit betrachtet werden, durchgeführt.

Der Brenner besteht aus drei konzentrischen Rohren mit Innenradien von  $r_{\text{Pilot}} = 7,4 \text{ mm}$ ,  $r_{\text{R1}} = 18,5 \text{ mm}$  und  $r_{\text{R2}} = 30 \text{ mm}$ . Die Rohre des Brenners sind jeweils axial um 5 mm gestuft, um optischen Zugang mit Optiken kleiner f-Zahl zu gewährleisten. Umgeben werden die drei Ringe des stratifizierten Brenners von einem *coflow* (dt. Beistrom) aus gefilterter Luft ( $r_{\text{coflow}} = 150 \text{ mm}$ ,  $v_{\text{coflow}} = 0,5 \text{ m/s}$ ), der einerseits definierte Randbedingungen für die numerische Simulation der Flamme schafft und andererseits das Eindringen von Staubpartikeln aus umgebender Tertiärluft in die Flamme verhindert. Dies ist notwendig, da an Staubpartikeln Mie-Streuung des Laserlichts erzeugt wird, das die Raman-/Rayleigh-Messung verfälscht.

Das Pilotrohr besteht in den oberen 200 mm aus einer  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Keramik, um die hohen Temperaturen der an der Oberfläche anliegenden Pilotflamme zu überstehen. Die Rohre für Ring 1 und 2 sind aus Edelstahl gefertigt.

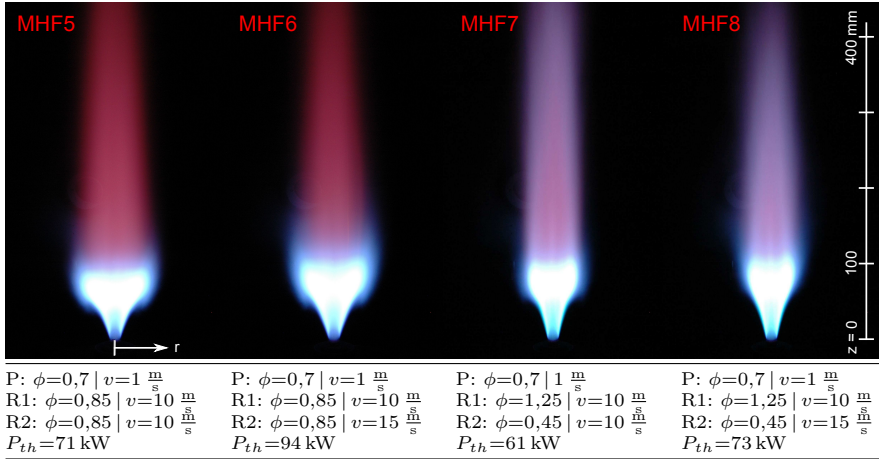


**Abbildung 3.3:** Schnittansicht des stratifizierten Brenners, an dem die Flammenkonfiguration MHF 5-8 untersucht wurden. Die einzelnen Ringe des Brenners und die Gasströmungen in den Ringspalten (Pfeile) sind farblich markiert. Pilotrohr (P, rot), Ring 1 (R1, grün), Ring 2 (R2, gelb), coflow (Luft, blau). Im Pilotrohr sitzt der Flammenhalter (weiß), in dessen Nachlauf sich die Pilotflamme stabilisiert.

Der Flammenhalter im Pilotrohr, der im Betrieb ca. 40 mm stromaufwärts der Öffnung sitzt, erzeugt eine Rezirkulationszone, in der sich die Pilotflamme stabilisiert. Diese entzündet am Rohraustritt die Hauptflamme. Durch die Pilotierung ist die Flamme über dem stratifizierten Brenner strömungsdynamisch einfach, da kein Staukörper o. ä. zur Erzeugung einer Rezirkulationszone zur Flammenstabilisierung notwendig ist. Auch das Fehlen von Drall in der Strömung und die Axialsymmetrie des Brenners erzeugen ein einfaches Strömungsfeld. Damit sind die Voraussetzungen geschaffen, experimentelle Untersuchung der Stratifizierung und der Scherung ohne die Überlagerung komplexer Strömungseffekte durchzuführen. Die Stratifizierung wird durch die Einstellung unterschiedlicher Brennstoff-Luft-Gemische in den einzelnen Ringspalten des Brenners eingestellt. Durch unterschiedliche Ausströmgeschwindigkeiten in Ring 1 und 2 kann eine Scherung in der Flamme erzeugt werden.

Die Betriebsparameter für die in dieser Arbeit untersuchten Flammenkonfigurationen der *Methane Hydrogen Flame* (MHF) 5-8 sind in Abb. 3.4 unten gezeigt. Direkt darüber sind Flammenfotografien zur Visualisierung der Flammenformen, die sich über dem Brenner ausbilden. Die Reynolds-Zahl der Rohrströmung, berechnet aus den Ausströmgeschwindigkeiten und der Gemischzusammensetzung, beträgt für Ring 1  $Re \approx 12.500$  und für Ring 2  $Re \approx 12.200$  (MHF 5 und 7) bzw.  $Re \approx 18.500$  (MHF 6 und 8). Der Brenner wurde bereits für eine Reihe anderer Experimente zur Stratifizierung reiner Methan-Flammen verwendet [48, 92]. In deren Rahmen wurde auch das Strömungsfeld ähnlicher Flammen vermessen [85], was eine Einordnung der zu erwartenden Strömungsgrößen zulässt (vgl. Kap. 2.6).

Die Äquivalenzverhältnisse in den einzelnen Ringspalten für die Konfigurationen MHF 5-8 (vgl. Abb. 3.4) wurden auf Basis der berechneten laminaren Brenngeschwindigkeiten der Gemische (vgl. Abb. 2.8 (links) in Kap. 2.4) festgelegt. Die Äquivalenzverhältnisse für die stratifizierten Fälle (MHF 7 und 8) wurden so gewählt, dass die Brenngeschwindigkeiten des brennstoffreichen Gemischs in Ring 1 ( $\phi_{R1} = 1,25$ ) und des Gemischs mit dem mittleren Äquivalenzverhältnis aus Ring 1 und 2 ( $\bar{\phi}_{R1,R2} = 0,85$ ) identisch waren. Die Brenngeschwindigkeit beträgt in beiden Gemischen  $s_{l,\phi=0,85} = s_{l,\phi=1,25} = 0,344$  m/s. Damit ergab sich für das Äquivalenzverhältnis in Ring 2:  $\phi_{R2} = 2\bar{\phi}_{R1,R2} - \phi_{R1} = 0,45$ . Durch die so gestufte Stöchiometrie in den einzelnen Ringen des stratifizierten Brenners konnten zwei Ziele in Bezug auf die Brenngeschwindigkeit erreicht werden:



**Abbildung 3.4:** Fotografien der Flammen der Konfigurationen MHF 5-8 (oben) und deren Betriebspa-  
 rameter (unten). Notiz: verwendete Kamera: Nikon D70s, Belichtungszeit: 400 ms, Brennweite: 24 mm,  
 ISO: 400, 250 mm über dem Brenner und 900 mm von der Mittelachse entfernt. Definition der Höhe  $z$   
 und radialen Richtung  $r$ . P: Pilot, R1: Ring 1, R2: Ring 2. Äquivalenzverhältnis  $\phi$ , Ausströmgeschwin-  
 digkeit  $v$  und thermische Nennleistung  $P_{th}$ . Anteil  $\text{H}_2$  am Brennstoff ist immer 20 Vol.-%.

1. Am Schnittpunkt von mittlerer Flammenzone (*flame brush*) und Mischungsschicht (zwischen Ring 1 und 2) wurde in allen vier Konfigurationen das gleiche mittlere Äquivalenzverhältnis ( $\phi = 0,85$ ) eingestellt. Damit besaß das Gemisch hier immer die gleiche (laminare) Brenngeschwindigkeit. Dies erlaubte eine direkte Quantifizierung des Einflusses der Stratifizierung und  $\text{H}_2$ -Kodotierung (vgl. Kap. 4.3) im Vergleich der vorgemischten Konfigurationen (MHF 5 und 6) mit den stratifizierten Konfigurationen (MHF 7 und 8).
2. Die Brenngeschwindigkeit des Gemisches in den vorgemischten Konfigurationen (MHF 5 und 6,  $\phi = 0,85$ ) ist identisch mit der Brenngeschwindigkeit des Gemisches in Ring 1 in den stratifizierten Konfigurationen (MHF 7 und 8,  $\phi = 1,25$ ). In geringen axialen Höhen unterhalb des Schnittpunktes von *flame brush* und Mischungsschicht brannte nahezu ausschließlich Gemisch aus Ring 1. Somit war die laminare Brenngeschwindigkeit in allen vier MHF-Konfigurationen in geringen axialen Höhen gleich. Dadurch sollte sich eine makroskopisch ähnliche Flammenform ergeben, die das Herausstellen von Effekten der Stratifizierung im Vergleich von MHF 5 und 7 mit MHF 6 und 8 erleichterte.

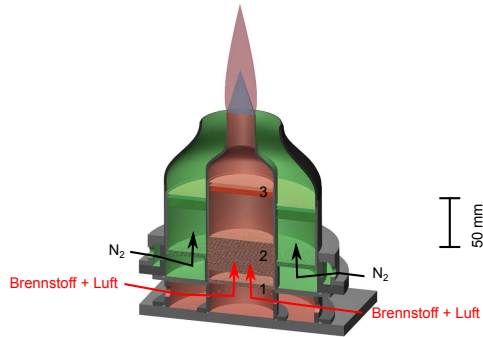
Die vorgemischten Konfigurationen MHF 5 und 6 bildeten Referenzfälle für den Vergleich mit den stratifizierten Fällen MHF 7 und 8.

### Laminarer Jet-Brenner

Am laminaren Jet-Brenner wurden im Rahmen dieser Arbeit Experimente an einer laminaren Kegelflamme durchgeführt. In Abb. 3.5 ist eine Schnittansicht des Brenners dargestellt. Der Brenner besteht aus einem zentralen Rohr mit  $d = 31 \text{ mm}$  Durchmesser, über



dem sich die mit Luft vorgemischten Brenngase entzünden. Umgeben ist er von einem *coflow* aus  $N_2$  ( $d_{coflow} = 88\text{ mm}$ ).

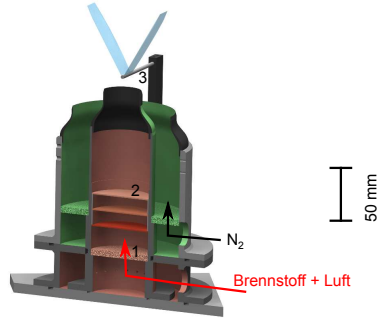


**Abbildung 3.5:** Schnittansicht des laminaren Jet-Brenners mit dem Zustrom der vorgemischten Brenngase und Luft (rote Pfeile) und des *coflows* (schwarze Pfeile). Die Brenngase werden durch eine Sinterbronze (1), eine Wabenstruktur (2) und sukzessive feiner werdende Drahtnetze (3) homogenisiert. Die sich ausbildende Kegelflamme (blau) und der gewölbte Abgaskegel (rot) sind schematisch dargestellt.

Die Kontraktion stromaufwärts des Brenneraustritts dient zur Homogenisierung der Strömung und ist in Anlehnung an [10] ausgelegt. Wie in Abb. 3.5 gezeigt sind stromaufwärts der Düse weitere Einrichtungen zur Strömungshomogenisierung vorhanden. Diese sind, in Strömungsrichtung, eine Sinterbronze (Dicke: 5 mm, Porengröße: 20  $\mu\text{m}$ ), eine Metallwabenstruktur mit ca. 1,5 mm Wabenabstand und 3 aufeinanderfolgende Edelstahlnetze mit einer Maschenweite von 1, 0,6 und 0,4 mm. Um Pulsationen der Flamme zu unterbinden, wurde ein Kaminrohr ( $d_{Kamin} = 100\text{ mm}$ ) in einer Höhe von 80 mm über dem Brenner montiert (nicht gezeigt). Die aufwendigen Maßnahmen zur Strömungshomogenisierung waren notwendig, um bei den geringen Ausströmgeschwindigkeiten ( $v \approx 1\text{ m/s}$ ) eine störungsfreie Flammenfläche zu erzeugen. Die Reynolds-Zahlen im Brennerrohr betrugen  $Re < 1800$ . Betrieben wurde der Brenner mit einem Methan-Luft-Gemisch unter Kodotierung von  $H_2$  mit bis zu 40-Vol.-% und einem Äquivalenzverhältnis von  $0,7 < \phi < 1,3$ . Abhängig von der Brenngeschwindigkeit des verwendeten Gemisches wurde die Ausströmgeschwindigkeit modifiziert, um eine konstante Kegelhöhe der Flamme bei allen Konfigurationen zu erreichen.

### Vertikaler Flammenbrenner

Ein weiterer in dieser Arbeit verwendeter Brenner ist der vertikale Flammenbrenner (V-Flamme), vgl. Abb. 3.6. Im Nachlauf eines  $Al_2O_3$ -Keramikdrahts stabilisieren sich zwei Flammenäste in V-Form. Da der Brenner um die Achse des Drahtes schwenkbar ist (nicht gezeigt) kann ein Flammenast vertikal zum Laborkoordinatensystem und dem 1-D-Probevolumen des Raman-/Rayleigh-Messsystems gestellt werden; daher rührt die Benennung „vertikale Flamme“. Der Brenner besitzt ähnlich des laminaren Jet Brenners (s. o.) eine Sinterbronze (Dicke: 5 mm, Porengröße: 20  $\mu\text{m}$ ), drei Drahtnetze (Maschenweite: 1, 0,6 und 0,4 mm) und eine Düse zur Strömungshomogenisierung. Der Bereich der Stöchiometrie, mit der der Brenner betrieben werden kann, ist schmäler als beim laminaren Jet-Brenner und auf Äquivalenzverhältnisse  $0,6 < \phi < 0,9$  bzw.  $1,2 < \phi < 1,3$  limitiert. Bei Gemischen mit höherer Brenngeschwindigkeit ( $0,9 < \phi < 1,2$ ) legt die Flamme am



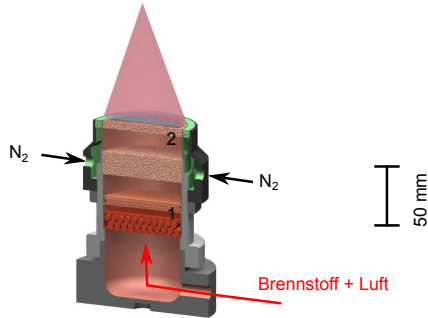
**Abbildung 3.6:** Schnittansicht des vertikalen Flammenbrenners mit dem Zustrom der vorgemischten Brenngase und Luft (roter Pfeil) und des *coflows* (schwarzer Pfeil). Die Brenngase werden durch eine Sinterbronze (1) und sukzessive feiner werdende Drahtnetze (2) homogenisiert. Die ebenen Flammenäste stabilisieren sich in Nachlauf eines Keramikdrahtes (3). Sie sind schematisch als blaue Flächen dargestellt.

Keramikdraht an und bringt ihn hellrot zum Glühen. Diese Lichtemission überlagerte stark die Raman-/ Rayleigh-Messung. Betrieben wurde der Brenner mit einem Methan-Luft-Gemisch unter Kodotierung von  $H_2$  mit bis zu 40-Vol.-%.

Die ebene, riefenlose und ungestreckte Flamme, die mit dem Brenner erzeugt werden konnte, eignet sich hervorragend, um das Raman-/ Rayleigh-Messsystem im gesamten Temperaturbereich ( $300\text{ K} < T < 2100\text{ K}$ ) einer Vormischflamme zu kalibrieren. Durch den senkrechten Verlauf des 1-D-Probevolumens durch die Flammenfront wird die räumliche Struktur der Flamme sehr gut durch die Werte der Simulation einer frei propagierenden Flamme wiedergegeben. Diese Werte können dann zur Kalibration der Messwerte verwendet werden (vgl. Kap. 3.4.3 und 4.1).

### Flachflammenbrenner

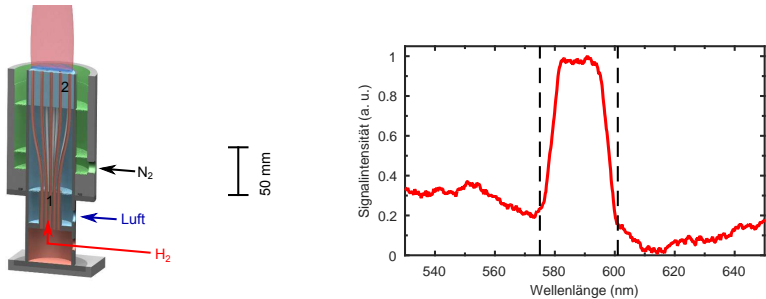
Der Flachflammenbrenner (vgl. Abb. 3.7, [32]) wird zur Kalibration des Raman-/Rayleigh-Messsystems im hohen Temperaturbereich ( $2000\text{ K} < T < 2200\text{ K}$ ) verwendet. Im Flachflammenbrenner wird die Strömung homogenisiert, indem sie zunächst zwei Kugelpackungen durchläuft (Kugeldurchmesser:  $d_1 = 5\text{ mm}$  und  $d_2 = 1\text{ mm}$ ) und anschließend eine Sinterbronze (Dicke:  $5\text{ mm}$ , Porengröße:  $20\text{ }\mu\text{m}$ ) durchströmt. Die Austrittsgeschwindigkeit entspricht in etwa der laminaren Flammengeschwindigkeit, sodass sich die Flammen in geringer Höhe (ca.  $1\text{ mm}$ ) oberhalb der Sintermatrix stabilisiert. Der *coflow* aus  $N_2$  sorgt dafür, dass die Flamme am Rand der Sinterbronze nicht am Brenner anliegt und diesen erhitzt. Dies würde zur Vorwärmung des einströmenden Brennstoff-Luft-Gemisches führen und die Flammentemperatur erhöhen. Durch Strahlungsverluste liegt die Temperatur im Abgas (bei  $\phi > 1$ ) ca.  $40\text{ K}$  unterhalb der adiabaten Flammentemperatur [60]. Dies wird bei der Kalibration des Raman-/ Rayleigh-Messsystems (vgl. Kap. 3.4.3) berücksichtigt, bei der sich das 1-D-Probevolumen parallel zur Sinterbronze und ca.  $20\text{ mm}$  darüber befindet. Die Messwerte für Temperatur und Spezieskonzentrationen werden dann mit den Gleichgewichtsgrößen aus einer frei propagierenden Flammen-Rechnung abgeglichen und eingestellt. Betrieben wird der Brenner ausschließlich mit einem Gemisch aus  $CH_4$  und Luft bei gewöhnlich neun variierten Äquivalenzverhältnissen ( $0,85 < \phi < 1,3$ ).



**Abbildung 3.7:** Schnittansicht des Flachflammenbrenners mit dem Zustrom der vorgemischten Brenngase und Luft (roter Pfeil) und des *coflows* (schwarze Pfeile). Die Brenngase werden durch zwei Kugelpackungen (1) und eine Sinterbronze (2) homogenisiert. Direkt über der Sintermatrix bildet sich die flache Flamme aus. Sie ist schematisch in blau dargestellt. Darüber befindet sich der Abgaskegel (rot).

### Hencken-Brenner

Der letzte verwendete Kalibrierbrenner ist der Hencken-Brenner (vgl. Abb. 3.8 links). Da dieser Brenner mit  $H_2$  befeuert wird, ist aus sicherheitstechnischen Aspekten eine Vormischung der Brenngase mit Luft ausgeschlossen. Als Referenzwerte für die Temperatur- und Spezieskalibration wird die Berechnung einer frei propagierenden Flamme verwendet. Daher ist der Brenner derart aufgebaut, dass sich eine quasi-vorgemischte Flamme ausbildet, in der die vorliegenden Skalardaten denen der 1-D-Rechnung entsprechen. Dazu wird  $H_2$  in 100 Kupferröhrchen an die Brennoberfläche befördert. Dort ist jedes dieser Röhrchen



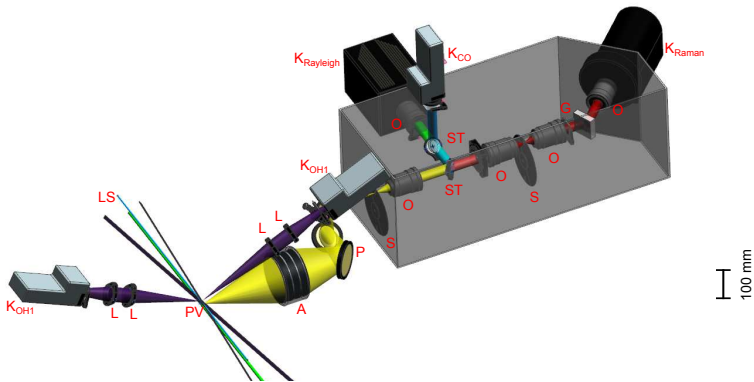
**Abbildung 3.8:** Schnittansicht des Hencken-Brenners (links) und spektral aufgelöstes Flammenleuchten (rechts) der Flamme. Die Schnittansicht enthält den Zustrom des Brenngases  $H_2$  (roter Pfeil), der Luft (blauer Pfeil) und des *coflows* (schwarzer Pfeil).  $H_2$  wird durch 100 Kupferröhrchen (Innendurchmesser:  $d_i = 0,5$  mm, schematisch in reduzierter Anzahl dargestellt (1)) an die Brennoberfläche geleitet. Luft strömt durch eine Metallwabenstruktur (2) an die Oberflächen. Durch sofortige Mischung von  $H_2$  entsteht eine quasi-vorgemischte Flamme (blau) parallel zur Brennoberfläche. Darüber befindet sich der Abgaskegel (rot, im Bild abgeschnitten). Rechts: charakteristisches rötliches Flammenleuchten ( $575 \text{ nm} < \lambda < 601 \text{ nm}$ , gestrichelte Linien) der Abgase des Hencken-Brenners bei  $\phi = 1$  aufgenommen mit dem Raman-Spektrometer ohne Laser.

von sechs Öffnungen ( $d = 1 \text{ mm}$ ) der Metallwabenstruktur umgeben, aus welchen Luft strömt. Die hohe Diffusivität des  $\text{H}_2$  führt dann zur schnellen Einstellung eines homogenen Brennstoff-Luft-Gemisches. Dies rechtfertigt die Annahme der Quasi-Vormischung. Das 1-D-Probevolumen des Raman-/Rayleigh-Messsystems liegt bei der Kalibration ca. 20 mm oberhalb der Brenneroberfläche und parallel dazu. Der Brenner eignet sich zur Kalibration der Übersprechfunktionen auf C-haltige Spezies (vgl. Kap. 3.4.3), da diese im Abgas definitiv nicht vorliegen. Betrieben wird der Brenner, dank der breiten Brennbarkeitsgrenzen von  $\text{H}_2$ -Gemischen, in einem Bereich des Äquivalenzverhältnisses von  $0,18 < \phi < 1,95$ .

In Abb. 3.8 rechts ist die charakteristische rot-orange Luminosität ( $575 \text{ nm} < \lambda < 601 \text{ nm}$ ) im Abgas des Hencken-Brenners zu sehen. Diese Lichtemission wird mit großer Wahrscheinlichkeit von heißem gasförmigem Wasser verursacht, das hier ( $T = 2390 \text{ K}$ ) mit einem Anteil ca. 32 Vol.-% vorliegt. Die Aufnahmen wurden mit dem Raman-Spektrometer erstellt, wobei kein Raman-Streulicht mittels Laser erzeugt wurde.

### 3.2.2 Experimenteller Aufbau an den Sandia National Laboratories

In Abb. 3.9 ist der Aufbau der Detektionseinheit des Raman-/ Rayleigh-/ CO-LIF-Prüfstands mit zwei gekreuzten OH-PLIF-Lichtsnitten gezeigt. Der Aufbau befindet sich an den Sandia National Laboratories, USA, und wurde in vielen Publikationen detailliert beschrieben [7, 43, 96]. Daran wurden im Rahmen dieser Arbeit die Experimente zu den turbulenten stratifizierten Flammen MHF 5-8 durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Kap. 4.2 und 4.3 beschrieben.



**Abbildung 3.9:** Schematische Darstellung der Detektionseinheit des Raman-/ Rayleigh-/ CO-LIF-Aufbaus mit zwei gekreuzten OH-PLIF-Lichtsnitten an den Sandia National Laboratories, nach [91]. Anregung durch vier Laserstrahlen (LS, für Raman-/Rayleigh-Streuung, CO-LIF und zweimal OH-PLIF) zur Messung im Probevolumen (PV). Strahlführung des Streulichts über: Achromat (A), drei Periskopspiegel (P), Objektive (O), Strahlteiler (ST), Transmissionsgitter (G), Kameras (K), Linsen (L), rotierende Shuttterscheiben (S). Dieser Messaufbau wurde für die Messung an den Flammen MHF 5-8 verwendet (vgl. Kap. 4.2 und 4.3).

Mittels der kombinierten Raman- und Rayleigh-Spektroskopie wurden die Temperatur und die Hauptspezieskonzentrationen ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2$ ) entlang eines 6 mm langen Probenvolumens im Einzelschuss gemessen. Zusätzlich kam die CO-LIF-Messtechnik (Zwei-Photonen-Prozess) zum Einsatz, um die Konzentration von CO mit höherer Präzision als mit der Raman-Streuung möglich zu detektieren.

Das Raman-/ Rayleigh-Streulicht wurde durch vier frequenzverdoppelte Nd:YAG Laser erzeugt. Die Laser feuerten sequentiell um ca. 80 ns gegeneinander versetzt. Im weiteren Strahlverlauf wurden die Pulse über drei optische Verzögerungsstrecken (vgl. [46]) zu einem einzelnen zeitlich gestreckten Laserpuls ( $t_{\text{Laser}} \approx 400 \text{ ns}$ ) mit ca. 1,5 J/Puls überlagert. Durch dieses Verfahren konnte die Maximalintensität des Pulses gesenkt werden, um laserinduzierte optische Durchbrüche zu vermeiden. Der Laserstrahl wurde in das Probenvolumen fokussiert. Dort erreichte er einen minimalen Durchmesser von  $d_{\text{Laser}} \approx 200 \mu\text{m}$  ( $1/e^2$ ). Ein UV-Laser (2 mJ/Puls) bei  $\lambda = 230,1 \text{ nm}$  wurde für die CO-LIF-Anregung auf den Verlauf der Nd:YAG Lasers überlagert.

Zwei achromatische Linsensysteme mit einem Durchmesser von  $d = 150 \text{ mm}$  (Linos Photonics f/2 und f/4) fokussierten das Raman-/Rayleigh-/CO-LIF-Signal aus dem Probenvolumen in das Spektrometer. Die Hauptkomponenten der Detektionseinheit waren zwei Shutterscheiben zur Regelung der Belichtungszeit, sechs kommerziell verfügbare Kameraobjektive, ein Transmissionsgitter (Kaiser Optical, 1200 Linien/mm) sowie Spiegel (Periskop) und Strahlteiler, um das Raman-Streulicht ( $\lambda \approx 550 \text{ nm}$  bis  $700 \text{ nm}$ ) spektral vom Rayleigh-Streulicht ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ ) und dieses von der CO-Fluoreszenz ( $\lambda \approx 480 \text{ nm}$  bis  $488 \text{ nm}$ ) zu trennen.

Zur Aufnahme des Raman-Signals kam eine rauscharme tieftemperaturgekühlte ( $T = 163 \text{ K}$ ) CCD-Kamera (Princeton Instruments VersArray 1300B mit einer CryoTiger Kühleinheit) zum Einsatz. Das Rayleigh-Signal wurde mit einer weiteren thermo-elektrisch gekühlten CCD-Kamera (Princeton Instruments 1340/1300 EMB) detektiert. Die CO-Fluoreszenz wurde mit einer intensivierten CCD-Kamera (Andor DH-734-18F-03) aufgenommen. Zur Steuerung der Belichtungszeit kamen zwei rotierende Scheiben mit der Drehzahl  $N = 3.000 \text{ U/min}$  und  $N = 21.000 \text{ U/min}$  zum Einsatz. Der stationäre und der rotierende Spalt hatten eine Breite von  $d = 0,50 \text{ mm}$  und  $d = 0,55 \text{ mm}$  und befand sich auf einer mittleren radialen Position von  $r = 63,5 \text{ mm}$  ausgehend von der Scheibenachse. Die beiden Scheiben standen in zwei Fokusebenen des Strahlengangs und waren über ein eigens dafür angefertigtes Elektronikmodul (*phase locked loop*) synchronisiert. Die Belichtungszeit für die Raman-Kamera betrug damit  $t = 3,9 \mu\text{s}$  (FWHM). Das System zur Steuerung der Belichtungszeit ist ähnlich zu dem im Rahmen dieser Arbeit am RSM aufgebauten. Dieses wird in Kap. 3.3 detailliert beschrieben.

Die gekreuzten Lichtschnitte zur Anregung der OH-Fluoreszenz wurden über einen Nd:YAG-gepumpten Farbstofflaser erzeugt. Das Laserlicht wurde dann auf  $\lambda = 283,5 \text{ nm}$  (3 mJ/Puls) frequenzverdoppelt und über einen Strahlteiler hälftig geteilt. Der erste Anregungsstrahl wurde direkt ins Probenvolumen geleitet während der zweite über eine Laufstrecke um  $t \approx 40 \text{ ns}$  verzögert wurde und dann ebenfalls ins Probenvolumen eingekoppelt wurde. Dort schnitten sich die beiden Laserlichtschnitte in einem Winkel von  $34^\circ$ . Die Schnittgerade lag exakt auf dem 1-D-Probenvolumen der Raman-/ Rayleigh-/CO-LIF-Messung. Die Abbildung der Fluoreszenz auf den beiden intensivierten CCD-Kameras (Andor Istar DH-312T-18F-E3) erfolgte durch zwei CVI-UV-aplanare Linsensysteme (APMQ, 60 mm Apertur, 300 mm Arbeitsabstand). Die optischen Achsen der Kameras und der Linsensysteme waren orthogonal zu den Laserlichtschnitten ausgerichtet, um Verzerrungen zu minimieren.

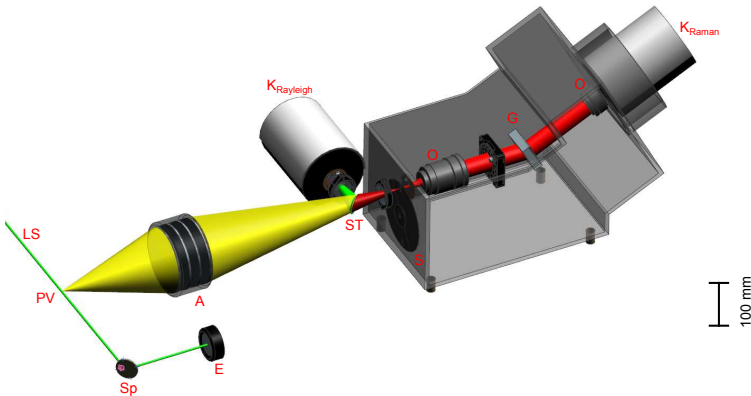
Durch binning (d. h. aufsummieren der Countwerte mehrerer Pixel) konnte das Signal-zu-Rausch-Verhältnis verbessert werden. Dadurch ergab sich eine räumliche Diskretisierung des Probevolumens entlang der Laserachse von 0,103, 0,02, 0,101 und 0,05 mm für die Raman-, Rayleigh-, CO-LIF- und OH-PLIF-Kameras. Die optische Auflösung des Detektionssystems war limitiert durch das achromatische Linsensystem und betrug ca. 0,06 mm. Die Ausrichtung und Fokussierung der fünf Kameras erfolgte über die Aufnahme einer Punktmaske, die ersatzweise an der Stelle des Probevolumens aufgestellt wurde.

### 3.2.3 Experimenteller Aufbau am RSM

In Abb. 3.10 ist der Aufbau der Detektionsseite des Raman-/ Rayleigh-Prüfstands am RSM der TU Darmstadt gezeigt [64, 83, 91]. Daran wurden die Experimente zu laminarem Jet und vertikaler Flamme durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Kap. 4.1 beschrieben.

Mit kombinierter Raman- und Rayleigh-Spektroskopie wurden die Temperatur und die Hauptspezieskonzentrationen ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2$ ) entlang eines 6 mm langen Probevolumens gemessen. Zur Anregung wurde ein eigens dafür gebauter frequenzverdoppelter Nd:YAG-Langpuls laser (Quantel) mit 500 mJ/Puls verwendet. Die Pulsdauer betrug  $t_{\text{Laser}} \approx 450$  ns (FWHM). Der Laserstrahl wurde mit einer sphärischen Linse (Brennweite:  $f = 750$  mm) in das Probevolumen fokussiert und erreichte im kleinsten Durchmesser  $d = 150 \mu\text{m}$  ( $1/e^2$ ). Um Schuss-zu-Schuss-Fluktuationen der Laserenergie in der Auswertung kompensieren zu können, loggte ein Energiemesskopf, auf den der Laserstrahl nach der Zielflamme traf, die momentane Einzelschussenergie mit.

Das identische achromatische Linsensystem (Linos Photonics, Durchmesser:  $d = 150$  mm,  $f/2$  und  $f/4$ ) wie im Aufbau in Sandia (vgl. Kap. 3.2.2) fokussierte das Streulicht auf



**Abbildung 3.10:** Schematische Darstellung der Detektionseinheit des Raman-/ Rayleigh-Aufbaus am RSM der TU Darmstadt, nach [91]. Anregung durch den Laserstrahl (LS) zur Messung im Probevolumen (PV). Laserstrahl wird über Spiegel (Sp) auf den Energiemesskopf geleitet (E). Strahlführung des Streulichts über: Achromat (A), Strahlteiler (ST), Objektive (O), Transmissionsgitter (G), Kameras (K), rotierende Shutter (S). Dieser Messaufbau wurde für die Messung am laminaren Jet und der vertikalen Flamme verwendet (vgl. Kap. 4.1).

den stationären Eingangsspalt ( $d = 0,8\text{ mm}$ ) des Spektrometers. Die Komponenten des Spektrometers waren: zwei über ein Getriebe gekoppelte Scheiben zur Einstellung der Belichtungszeit, zwei kommerziell verfügbare Kameraobjektive, ein Transmissionsgitter (Kaiser Optical, 1200 Linien/mm) sowie ein Polarisationsfilter. Die Aufnahme des Raman-Streulichts erfolgte mit einer rauscharmen, thermo-elektrisch gekühlten CCD-Kamera (Princeton Instruments, Pixis 1300B). Das Rayleigh-Streulicht wurde im fokussierten Strahlengang des Achromaten über einen optischen Langpassfilter (Semrock, Grenzwellenlänge:  $\lambda_G > 532\text{ nm}$ ) spektral vom Rayleigh-Streulicht getrennt. Die Detektion erfolgte über eine zweite CCD-Kamera (Princeton Instruments, Pixis 400F).

Die Regelung der Belichtungszeit erfolgte über ein System aus zwei Scheiben, die mechanisch gekoppelt mit der Drehzahl  $N = 3.000\text{ U/min}$  und  $N = 21.000\text{ U/min}$  rotierten. Der rotierende Spalt befand sich auf einer mittleren radialen Position von  $r = 37,5\text{ mm}$  in der schnellen Scheibe und besaß eine Breite von  $r = 0,93\text{ mm}$ . Damit ließ sich eine minimale Belichtungszeit von  $t \approx 13\text{ }\mu\text{s}$  realisieren (vgl. [66] und Abb. 3.14 rechts in Kap. 3.3).

Die Bilddaten auf den Kameras wurden gebinnt, so dass die nominelle räumliche Diskretisierung auf der Raman-Seite  $0,153\text{ mm}$  und auf der Rayleigh-Seite  $0,02\text{ mm}$  betrug. Die optische Auflösung des Detektionssystems war wiederum durch das achromatische Linsensystem auf ca.  $0,06\text{ mm}$  limitiert. Die Ausrichtung und Fokussierung der beiden Kameras erfolgte über die Aufnahme einer Punktmaske, die ersatzweise an der Stelle des Probevolumens aufgestellt wurde.

### 3.3 Weiterentwicklung der Prüfstands am RSM: Neudesign Transmissionsspektrometer

In diesem Unterkapitel wird das Neudesign des Transmissionsspektrometers beschrieben. Als Kernstück der Detektionsseite des Prüfstandes ist es maßgeblich für die kombinierte Detektion des Raman-/Rayleigh/(LIF)-Streulichts. Mit dem hier beschriebenen bildgebenden System können hochaufgelöste 1-D-Messungen der Temperatur und der Konzentrationen der chemischen Hauptspezies und ihrer Gradienten in turbulenten Flammen durchgeführt werden. Das ist die Voraussetzung für das Verständnis der Struktur von stratifizierten turbulenten Flammen und für die Bereitstellung von Daten zur Modellvalidierung von Simulationen. Im Vergleich zum ersetzten Spektrometer ermöglicht das neue System eine höhere räumliche Auflösung, eine deutlich vereinfachte Justage und kürzere Belichtungszeiten – wichtig, um das Flammeneigenleuchten als Hintergrundsignal zu reduzieren. Im Folgenden wird auf die Anforderungen und Rahmenbedingungen für das neue Spektrometer eingegangen. Zudem werden die optische Auslegung und die mechanische Umsetzung der Shutter (engl. Verschluss) besprochen. Kurz wird die Strategie für die elektronische Regelung und Leistungsfähigkeit des Spektrometers gezeigt. Die final umgesetzte Konstruktion ist im Anhang A gezeigt (als Fotografie in Abb. A.1 und als CAD-Modell in Abb. A.3).

#### 3.3.1 Hintergrund und Anforderungen an das Transmissionsspektrometer

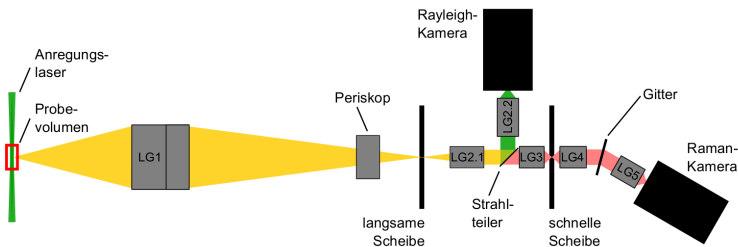
Generell ist die Funktion des Spektrometers die Abbildung des Raman-/Rayleigh/(LIF)-Streulichts aus dem Probevolumen (Ausdehnung ca.  $6\text{ mm} \times 200\text{ }\mu\text{m} \times 200\text{ }\mu\text{m}$ ) in der Flamme auf die Raman-/Rayleigh/(LIF)-Kamera. Das ideale Spektrometer besitzt eine

möglichst hohe räumliche sowie spektrale Auflösung (im Bereich von  $\lambda = 550\text{ nm}$  bis  $700\text{ nm}$ ) und erzeugt keine Abbildungsfehler oder Transmissionsverluste. Es öffnet den Strahlengang nur für die Dauer des Laserpulses ( $t \approx 500\text{ ns}$ ), um das Eindringen von Flammeneigenleuchten und Hintergrundlicht zu minimieren. Das realisierte Spektrometer unterscheidet sich von einem idealen Spektrometer aufgrund von Bauraumbeschränkungen, kommerzieller Verfügbarkeit der Komponenten, Werkstoffeigenschaften und Einhaltung eines Kostenrahmens.

### Motivation Neubau des Spektrometers

Die strategische Ausrichtung auf zukünftige Messungen in hell leuchtenden Flammen machten kürzere Belichtungszeiten für die Raman-Seite und damit ein neues Spektrometer unumgänglich. Zusätzlich sollte für kommende Forschungsvorhaben die Voraussetzung geschaffen werden, komplexere Brennstoffe zu untersuchen [22]. Für deren spektroskopische Untersuchung müssen weitere Strahlteiler und Transmissionsgitter im Spektrometer implementiert werden. Das war im Design des alten Spektrometers nicht möglich. Unmittelbar notwendig wurde der Bau des neuen Spektrometers durch den Verschleiß am bisher bestehenden rotierenden Shutter (vgl. Kap. 3.2.3) und besonders durch alternde Regelungselektronik für dessen Steuerung. Hierfür waren Ersatzteile und Wissen für die Instandhaltung und Reparatur nicht vorhanden. Als Ausgangspunkt für das Neudesign dienten das bisher bestehende System am Institut RSM und ein weiterentwickeltes System an den Sandia National Laboratories, Livermore (vgl. Kap. 3.2.2).

### Randbedingungen für das Neudesign des Spektrometers



**Abbildung 3.11:** Schematische Skizze des optischen Aufbaus des Spektrometers in der Draufsicht. Strahlengang des Streulichts (farblich markiert) mit Linsengruppen 1-5 (LG).

In Abb. 3.11 ist eine Schemaskizze des gewählten Neudesigns gezeigt. Anhand dieser Skizze werden die Randbedingungen für das Design des Spektrometers und Vorüberlegungen dazu beschrieben:

- Laser
  - ⇒ Verwendung des vorhandenen Lasers (Innolas 4fach SpitLight 1000).
  - ⇒ Öffnung des optischen Strahlengangs nur für die Laserpulsdauer:  $t \approx 500\text{ ns}$ .
  - ⇒ Komplette Abbildung des Laserfokus im Probevolumen mit der Ausdehnung von ca.  $6\text{ mm} \times 200\text{ }\mu\text{m} \times 200\text{ }\mu\text{m}$ .



- Berücksichtigung des Einflusses des Messobjekts (turbulente Flamme):
  - ⇒ Komplette Abbildung des Probevolumens, das durch *beam steering* (engl. Laserstrahlableitung) und Laserstrahlaufweitung im heißen Brenngas in seiner Position und Ausdehnung fluktuiert.
- Achromat (LG 1)
  - ⇒ Weiterverwendung der nach Maß angefertigten Sammeloptik (LG 1, vgl. Abb. 3.11), bestehend aus zwei gegenläufig montierten Achromaten (Linos Photonics,  $f/2$  und  $f/4$ , Durchmesser:  $D = 150$  mm).
- Weitere strahlführende und fokussierende Optiken:
  - ⇒ Besitzen niedrige  $f$ -Zahlen, um großen Photonendurchsatz zu gewährleisten.
  - ⇒ Bauen klein, um Bauraumkonflikte mit den Motoren der Shutter scheiben zu vermeiden.
  - ⇒ Bestehen aus kommerziell verfügbaren Kameraobjektiven (leichte Verfügbarkeit, gute Korrektur von Abbildungsfehlern, passende Fokusslängen, Auslegung auf unendliche Objektweiten).
- Transmissionsgitter:
  - ⇒ Weiterverwendung des optischen Gitters (Kaiser Optical, Holographic Grating,  $76 \text{ mm} \times 76 \text{ mm}$ , 1200 Linien/mm).
  - ⇒ Abbildung des Spektralbereichs von  $\lambda \approx 550 \text{ nm}$  bis  $700 \text{ nm}$  auf dem Chip der Raman-Kamera (Breite:  $26,8 \text{ mm}$ ). Ausschlaggebend ist die Brennweite von LG 5 (vgl. Gl. 3.13 und Abb. 3.11).
- Kameras:
  - ⇒ Weiterverwendung der Rayleigh-Kamera (Princeton Instruments Pixis 400F, CCD mit Chipabmessungen:  $1300 \text{ Px} \times 400 \text{ Px}$ , Pixelgröße:  $0,02 \text{ mm}$ ).
  - ⇒ Weiterverwendung der Raman-Kamera (Princeton Instruments Pixis 1300B, CCD mit Chipabmessungen: Breite:  $1300 \text{ Px} \times 1340 \text{ Px}$ , Pixelgröße:  $0,02 \text{ mm}$ ).
- Vergrößerung:
  - ⇒ Kleine Vergrößerung in der Ebene des Zwischenbildes an der Stelle, an der sich die schnelle Scheibe befindet (vgl. Abb. 3.11). Damit kann der Spalt in der rotierenden Scheibe klein gebaut und die Belichtungszeit verkürzt werden.
  - ⇒ Die Gesamtvergrößerung (vom Probevolumen bis zum Chip der Raman-Kamera) soll das Bild des Probevolumens möglichst groß auf dem Chip der Raman-Kamera (Höhe:  $26 \text{ mm}$ ) darstellen. Eine hohe Vergrößerung erlaubt eine hohe räumliche Auflösung.
- Motoren zum Antrieb der Shutter räder:
  - ⇒ Bauen klein, um Bauraumkonflikte mit Objektiven zu vermeiden.
  - ⇒ Können mit kommerziell verfügbarer Hardware geregelt werden.
- Scheiben des rotierenden Shutters:
  - ⇒ Besitzen geringe Materialstärke, um den Strahlengang nicht zu beschneiden.

⇒ Materialfestigkeit ist groß genug, um hohen Drehzahlen ( $N > 20.000 \text{ U/min}$ ) standzuhalten.

Die technische Umsetzbarkeit und die Wiederverwendung vorhandener Komponenten der Anregungs- und Detektionsseite limitierten die Möglichkeiten für die Umsetzung des neuen Spektrometers am stärksten.

### 3.3.2 Optische Auslegung

Im folgenden Abschnitt wird die Auswahl der Objektive für LG 2.1 bis LG 5 sowie die mechanische Implementierung aller Optiken im neuen Spektrometer erörtert.

#### Objektivauswahl

Für die Linsengruppen standen kommerzielle Kameraobjektive zur Auswahl, da diese gut verfügbar waren, gut auf Abbildungsfehler (wie Distorsion, chromatische Aberration etc.) korrigiert waren und eine passende Fokusslänge für die Raman- und Rayleigh-Kamera besaßen. Die Auswahl der Objektive (nach Brennweite,  $f$ -Zahl, Hersteller) erfolgte iterativ im Spannungsfeld der Gesamtvergrößerung, Vergrößerung in der Ebene der schnellen Scheibe, spektraler Auflösung, Abbildungseigenschaften, Transmission und Bauraumbeschränkungen, s. o. Die final ausgewählten Objektive sind in Tab. 3.1 genannt.

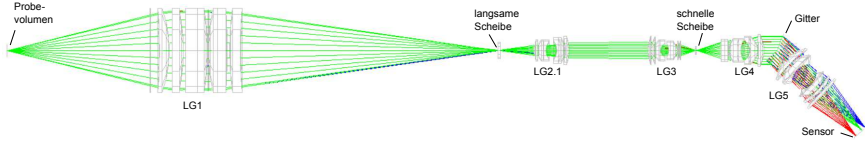
**Tabelle 3.1:** Final ausgewählte Objektive für das Spektrometer. Gemessene Transmission auf der Mittelachse bei  $\lambda = 633 \text{ nm}$  (Präzision ca. 1 %)

Linsengruppe	Brennweite (mm)	$f$ -Zahl (-)	Modell	Transmission (%)
LG 2.1	100	2	Canon	94
LG 2.2	100	2	Zeiss	94
LG 3	50	1,4	Nikon	94
LG 4	85	1,4	Zeiss	95
LG 5	135	2	Zeiss	93

LG 1 (vgl. Abb. 3.11) ist speziell für die kombinierte Raman-/Rayleigh-Spektroskopie entworfen und gebaut. Die Brennweite variiert im relevanten Bereich der Raman-Streuung von  $\lambda = 550 \text{ nm}$  bis  $700 \text{ nm}$  um weniger als  $0,3 \text{ mm}$  [100]. Für  $\lambda = 532 \text{ nm}$ , entsprechend der Rayleigh-Streuung ist die Brennweite ca.  $1 \text{ mm}$  länger. Das führt zu einer nicht kollimierten, divergenten Strahlausbreitung nach LG 2.1 für Rayleigh-gestreutes Licht. Das Verhältnis dieser Verschiebung der Brennweite zur Auslegungsbrennweite von LG 2.1 bestimmt, wie weit das Objektiv von seinen optimalen optischen Eigenschaften entfernt ist. Dies kann mit LG 2.2 teilweise kompensiert werden.

Nur für LG 1 war der genaue Aufbau der Linsenelemente bekannt, nicht jedoch für mögliche Objektive für LG 2.1 bis LG 5. Daher wurden der Aufbau der Objektive zur Vorlegung des optischen Designs mit zugänglichen Patenten approximiert (Doppel-Gauß-Anordnung, Schätzung der Anzahl der Linsenelemente und Gruppen, [89]). Anschließend erfolgte die Modellierung des Strahlengangs zur Abschätzung der Vignettierung (d. h. Abschattung) mit dem Programm zur Lichtstrahlverfolgung (engl. *ray tracing*): Qioptics Winlens [99] (vgl. Abb. 3.12). Die geeignetsten Brennweiten für LG 2.1 bis LG 5 konnten nur grob abgeschätzt werden, weil für den inneren Aufbau der Objektive im Modell zu wenig Informationen verfügbar waren. Das wichtigste Ergebnis aus der Modellierung war

die Identifikation des äußersten Strahlenbündels – in Bezug auf Winkel und Bildhöhe – nach LG 1. Damit konnte anschließend die beste gesamte Objektivkombination in Bezug auf Abbildungseigenschaft,  $f$ -Zahl und Transmission experimentell bestimmt werden [99].



**Abbildung 3.12:** Strahlengang des Streulichts im Spektrometer modelliert mit dem Programm zur Lichtstrahlverfolgung (engl. *ray tracing*): Qioptics Winlens. Der innere Aufbau der LG 2.1 bis LG 5 ist mit verfügbaren Patenten approximiert [99].

Die Vergrößerung ( $V$ ) auf Höhe der schnellen Scheibe (vgl. Abb. 3.11) wurde zurück auf  $V = 1$  gestellt. Mit LG 2.1 ( $f = 100$  mm) und LG 3 ( $f = 50$  mm) konnte die Vergrößerung des Achromaten (LG 1) von  $V \approx 2$ , im Vergleich zum Objekt im Probevolumen, rückgängig gemacht werden. Dies geschah, um kurze Öffnungszeiten des Strahlengangs zu ermöglichen. Ein größeres Zwischenbild hier würde die Flanken der Öffnungsfläche des Strahlengangs in der schnellen Scheibe flacher werden lassen (vgl. Abb. 3.14 rechts). Eine längere Öffnungszeit und damit mehr Leckage von Hintergrundlicht auf die Raman-Kamera wären die Folge, s. u.

Um größtmöglichen Photonendurchsatz zu gewährleisten, wurden Objektive mit niedriger  $f$ -Zahl gewählt. LG 3 musste direkt über dem Motor der schnellen Scheibe montiert werden. Das führte zu besonderen Bauraumbeschränkungen und erhöhte hier die minimal mögliche  $f$ -Zahl. Durch Divergenz des Strahlengangs zwischen LG 2.1 und LG 3 (bzw. LG 2.2) sowie zwischen LG 4 und LG 5 musste der Eintrittsdurchmesser der Objektive in Strahlrichtung sukzessive zunehmen.

Das Transmissionsgitter (Kaiser Optical, Holographic Grating,  $76 \text{ mm} \times 76 \text{ mm}$ , 1200 Linien/mm) erreichte seine maximale Beugungseffizienz (laut Hersteller ca. 73 % bei  $\lambda = 550 \text{ nm}$  und 700 nm und 90 % bei  $\lambda = 625 \text{ nm}$ ) bei maximaler Ausleuchtung. Zur Abbildung des relevanten Spektralbereichs ( $\lambda = 550 \text{ nm}$  bis  $700 \text{ nm}$ ) auf dem  $26,8 \text{ mm}$  breiten Chip der Raman-Kamera kam nach Gl. 3.13 maximal eine Brennweite von  $f = 135 \text{ mm}$  infrage. Daraus ergibt sich eine rechnerische spektrale Auflösung von

$$\frac{d\lambda}{dx} = \frac{\cos \beta}{G \cdot n \cdot f_{\text{LG5}}} = 5,72 \frac{\text{nm}}{\text{mm}}. \quad (3.13)$$

Die Gitterkonstante betrug  $G = 12001/\text{mm}$  und der Gitterwinkel  $\beta = 22^\circ$  für das erste Beugungsmaximum  $n = 1$ . Die Brennweite der Linsengruppe LG 5 hatte den Wert  $f_{\text{LG5}} = 135 \text{ mm}$ .

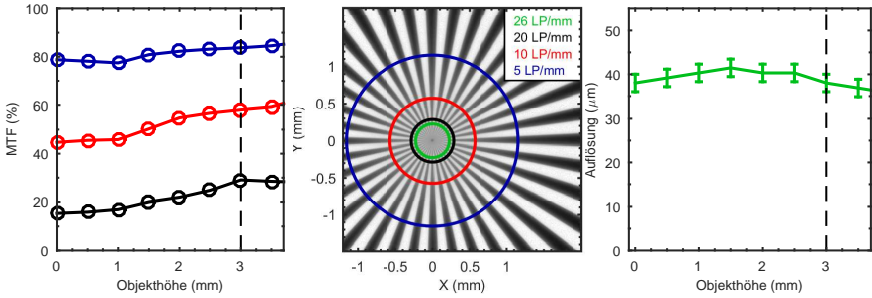
Auf die Experimente, in denen einzelne Objektive und Objektivkombinationen verglichen wurden, soll hier nicht im Detail eingegangen werden (Einzelheiten in [99]). Im Folgenden sind die verwendeten Methoden und Ergebnisse zusammengefasst:

- Transmission:  
Die Transmission wurde mittels dreier verschiedener Justagelaser (Wellenlänge:

532 nm, 633 nm und 670 nm) und eines Leistungsmesskopfes auf der Mittelachse der einzelnen Objektive gemessen (Ergebnisse in Tab. 3.1).

- Vignettierung:  
Die Vignettierung (d. h. Abschattung im Objektiv) wurde in möglichen Objektivkombinationen mittels eines Justagelasers und eines Leistungsmesskopfes gemessen. Der Justagelaser wurde in der Ebene des Zwischenbildes auf Höhe der langsamen Scheibe montiert (vgl. Abb. 3.11): Er war translatorisch verschiebbar (um die Objekthöhe zu simulieren) und verdrehbar (um den Winkel eines Strahlenbündels aus dem Achromat, d. h. LG 1, zu simulieren). Die Vignettierung begann, per Definition, an der Position, an der die transmittierte Leistung des Justagelasers um 50 % abfiel. Für die gewählte Objektivkombination (Tab. 3.1) begann die Vignettierung bei einer Objekthöhe von ca. 2,75 mm. Dies entspricht einer Länge des Probevolumens (vgl. Abb. 3.11) ohne Vignettierung von 5,5 mm und damit nahezu der gesamten Länge von 6 mm.
- Auflösung:  
Die Auflösung der gewählten Objektivkombination (LG 2.1 bis LG 5) wurde mithilfe eines rückseitig beleuchteten Siemenssterns (vgl. Abb. 3.13 Mitte) und einer sCMOS-Kamera bestimmt [14, 34]. Dabei wurde die Modulation der Grauwerte vermessen. Der grüne Ring (Abb. 3.13 Mitte) mit 26 Linienpaaren/mm entspricht der bestimmten Auflösungsgrenze: In Abb. 3.13 rechts ist die maximal erreichbare Auflösung über der Objekthöhe (entsprechend der halben Länge des Probevolumens von 3 mm, vgl. Abb. 3.11) gezeigt. Mit einer Auflösung von  $ca. 39 \pm 2 \mu\text{m}$  übersteigt sie die des Achromaten (Herstellerangabe: ca.  $60 \mu\text{m}$ ). Durch die Reihenschaltung aus LG 1 und LG 2.1 bis LG 5 ist keine Verschlechterung der Abbildung zu erwarten.
- Modulationstransferfunktion (MTF):  
Die Modulationstransferfunktion kennzeichnet das Abbildungsverhalten der Objektivkombination über der Objekthöhe. Sie wurde für vier Ortsfrequenzen (5, 10, 20, und 26 Linienpaare/mm entsprechend Objektgrößen von 200, 100, 50 und ca.  $39 \mu\text{m}$  –  $39 \mu\text{m}$  entsprechen der Auflösungsgrenze) aus den Aufnahmen des Siemenssterns (Abb. 3.13 Mitte) gewonnen [14, 34]. Die entsprechenden MTFs sind in Abb. 3.13 links gezeigt. Sie sind durch einen leicht ansteigenden Verlauf über die Objekthöhe gekennzeichnet. Das lässt auf gute Abbildungseigenschaften über die gesamte Objekthöhe hinweg schließen.

Zwischenfazit: Im vorangegangenen Abschnitt wurde das Vorgehen für die Auswahl der Objektive für LG 2.1 bis LG 5 besprochen. Dabei lag der Fokus auf hoher Transmission, guter Abbildungseigenschaft, geeigneter räumlicher Vergrößerung und spektraler Auflösung. Bauraumbeschränkungen erhöhten die minimal möglichen  $f$ -Zahlen der Objektive. Die Strahlhülle des Raman-/Rayleigh-Streulichtes nach LG 1 wurde modelliert, um die äußersten Strahlen zu identifizieren. Für diese war die Wahrscheinlichkeit zur Abschattung aufgrund ihrer exponierten Lage am höchsten. Anschließend erfolgten mithilfe dieser Daten empirische Untersuchungen mit möglichen Objektivkombinationen zur Transmission, Vignettierung, Auflösung und Modulation. Mit den gewählten Objektiven ist auf der Raman-Seite eine Aufnahme ohne Vignettierung im Probevolumen bis ca. 5,5 mm Objekthöhe (ca. 92 % des gesamten Probevolumens) möglich. Die Transmission für Licht der Wellenlänge  $\lambda = 633 \text{ nm}$  beträgt ca. 78 %. Auf der Rayleigh-Seite beträgt die Transmission ca. 83 %. Die untere Auflösungsgrenze wird durch den Achromat (LG 1) verursacht und beträgt ca.  $60 \mu\text{m}$ .



**Abbildung 3.13:** Links: Modulationstransferfunktion (MTF) für die vier Ortsfrequenzen (farbige Ringe in Abb. Mitte), aufgetragen über der Objekthöhe im Probevolumen (vgl. Abb. 3.11). Die senkrechte gestrichelte Linie deutet die maximale Höhe des Objekts an (entsprechend der halben Länge des Probevolumens von 3 mm). Mitte: Aufnahme des Siemenssterns durch die gewählte Objektivkombination LG 2.1 bis LG 5 (vgl. Tab. 3.1); farblich markiert sind die Ortsfrequenzen (5, 10, 20 und 26 Linienpaare/mm entsprechend Objektgrößen von 200, 100, 50 und 39 µm). Rechts: maximal erreichbare Auflösung über der Objekthöhe im Probevolumen; berechnet aus der Aufnahme des Siemenssterns (Abb. Mitte).

### Mechanischer Aufbau der Optiken

Im folgenden Abschnitt wird auf die mechanische Befestigung der optischen Komponenten eingegangen. Bei der mechanischen Befestigung wurde besonders auf die Stabilität gegenüber thermischen Drifts durch Wärmeeintrag der Flamme, Reibungswärme der rotierenden Scheiben und Abwärme elektrischer Komponenten geachtet. Die Halterungen weisen eine hohe Festigkeit auf, um Vibrationen der rotierenden Scheiben aufzunehmen. Zur Veranschaulichung der besprochenen Details wird auf das CAD-Modell des Spektrometers in Anhang A in Abb. A.3 verwiesen.

Der Achromat (LG 1) wurde auf eine massive Stahlplatte mit der Dicke ( $d = 12$  mm) und verstärkenden Stahlrippen gesetzt. In einer FEM-Simulation (Finite-Elemente-Methode) wurde die vertikale Absenkung des Achromaten, unter simulierter Wärmestrahlung der stratifizierten Flamme, auf  $z < 10$  µm eingeschätzt [73]. Ein Gehäuse schirmt die Wärmestrahlung der Flamme ab, um Verzug und Lösen des Kits, der die Linsengruppen hält, zu vermeiden.

Das Periskop (vgl. Abb. 3.11), besteht aus drei hochreflektierenden Spiegeln (Beschichter: Tafelmaier; Substrat: Siliziumdioxid, Reflektivität im Bereich  $\lambda = 470$  nm bis 700 nm ca. 99,9%). Es passt die Strahlage in der Höhe über dem optischen Tisch an und erleichtert die Justage im Spektrometer durch Verstellbarkeit der Spiegel. Zusätzlich dreht es das 1-D-Zwischenbild des Laserstrahls im Probevolumen senkrecht. Dadurch kann die spektrale Zerlegung am Gitter in der horizontalen Ebene erfolgen.

Die Objektive der LG 2.1 bis LG 5 sind auf einer einzigen Schiene montiert. Sie sind zur exakten Positionierung darauf verstiftet. So kann eine translatorische und rotatorische Bewegung der Objektive gegeneinander unterbunden werden. Andernfalls könnte dies die Abbildungsqualität negativ beeinflussen. Die notwendige Beweglichkeit in Strahlausbreitungsrichtung, zur Einstellung der Fokuslage zwischen LG 1 und LG 2.1 bzw. LG 3 und LG 4, ist über Translationstische sichergestellt.

Die Schiene besitzt eine Aussparung zur Implementierung eines weiteren Strahlteilers und Gitters. Damit ist der Aufbau vorbereitet, um in einem ausgewählten Spektralbereich höher aufzulösen. Etwa bei der Messung regenerativer Brennstoffe (wie Ethanol) ist dies vorteilhaft (vgl. [22]).

Die Fassung des optischen Gitters ist fest um den Gitterwinkel  $\beta = 22^\circ$  des ersten Beugungsmaximums gegen die optische Achse verdreht.

Die Raman- und Rayleigh-Kameras sind zur besseren Einstellbarkeit (auf Winkel und Position des Streulichts) außerhalb des Gehäuses des Spektrometers aufgestellt. So kann auch der Wärmeeintrag der Kameras auf das Spektrometer, der durch die Abwärme der Sensorkühlung entsteht, minimiert werden.

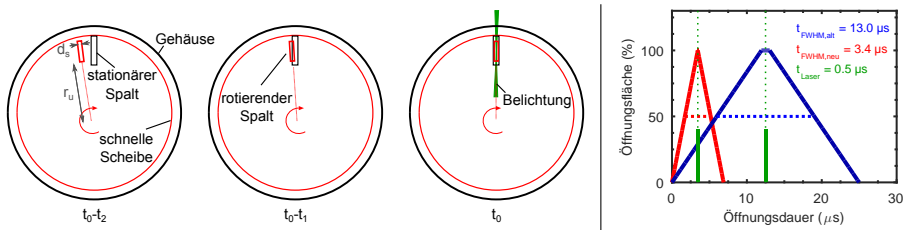
### 3.3.3 Rotierende Shutter und Synchronisation

Im folgenden Abschnitt wird die Auslegung der zwei rotierenden Shutter zur Einstellung der Belichtungszeit besprochen. Die Synchronisation der einzelnen Komponenten, wie Laser, Shutter, Kameras, wird dargestellt.

#### Kurze Belichtungszeit durch rotierenden Shutter

Die Funktion der Shutter im Spektrometer ist es, die Belichtungszeit der Raman-Kamera auf die Zeit zu limitieren, in der die Anregung des Raman-/Rayleigh-Streulichtes erfolgt. Die Zeitspanne ist identisch mit der Pulsdauer des Lasers. Sie beträgt  $t_{\text{Laser}} \approx 500 \text{ ns}$  und wiederholt sich periodisch mit  $f_{\text{Laser}} = 5 \text{ Hz}$ .

Die geeignetste Methode, um derart kurze Belichtungszeiten zu erzeugen, ist die Freigabe des Strahlengangs durch Überdeckung eines stationären und eines rotierenden Spalts. Der Vorgang ist schematisch in Abb. 3.14 links gezeigt: Der Strahl des Streulichts wird blockiert. Erst wenn er vom Spalt durchlaufen wird, überdecken sich Spalt und Strahlengang. Dann ist die Belichtung der Raman-Kamera freigegeben. In diesem Moment erfolgt der Laserschuss.



**Abbildung 3.14:** Links: Schemaskizze zu drei Zeitpunkten ( $t_0 - t_2$ ,  $t_0 - t_1$  und  $t_0$ ): sukzessive Freigabe des Strahlengangs durch Überdeckung des stationären und rotierenden Spalts. Die schnelle Scheibe rotiert in den Fokus des Strahlengangs zwischen LG 3 und LG 4 (vgl. Abb. 3.11). Rechts: relative Öffnungsfläche des alten und neuen Spektrometers im Vergleich; FWHM-Öffnungszeiten von  $13,0 \mu\text{s}$  bzw.  $3,4 \mu\text{s}$ . Dauer des Laserpulses  $t_{\text{Laser}} = 0,5 \mu\text{s}$  mit Bildgröße des Streulichts von ca. 40 % der Öffnungsfläche (grünes Rechteck). Der Laserschuss erfolgt jeweils mittig im Zeitfenster der Öffnung der schnellen Scheibe.

Sehr kurze Belichtungszeiten ( $t \approx 500 \text{ ns}$ ) sind notwendig, um zu vermeiden, dass Hintergrundlicht und Flammeneigenleuchten das Signal auf der Raman-Kamera überlagern. Das kontinuierliche Flammeneigenleuchten kann in ungünstigen Konstellationen eine ähnliche Größenordnung besitzen wie das Nutzsignal. Deshalb ist die Dauer der Belichtung zu minimieren. Die Verwendung nicht intensivierter CCD-Kameras (wegen der guten Rauschcharakteristik und Quanteneffizienz) macht einen elektronischen Verschluss unmöglich.

Das Shutterssystem im bisherigen Spektrometer (vgl. Kap. 3.2.3) bestand aus zwei rotierenden Scheiben, die über ein Getriebe gekoppelt waren. Ihre Drehzahl betrug (21.000 und 3000 U/min) und erlaubte Öffnungszeiten (bezogen auf die Halbwertsbreite, engl. *full width at half maximum*, FWHM) von 13,0  $\mu$ s, vgl. Abb. 3.14 rechts. Dieselben Drehzahlen wurden auch beim neuen Spektrometer gewählt.

Die Öffnungszeit  $t_{\text{FWHM}}$  berechnet sich für den Aufbau des neuen Spektrometers nach Gl. 3.14

$$t_{\text{FWHM}} = \frac{d_s}{2 \cdot \pi \cdot N \cdot r_u}, \quad (3.14)$$

mit der Spaltbreite der schnellen Scheibe  $d_s = 500 \mu\text{m}$ , der Drehzahl  $N = 21.000 \text{ U/min}$  und dem unteren Radius des Spalts  $r_u = 66 \text{ mm}$  (die Mitte des Spalts liegt radial bei  $r = 70 \text{ mm}$ ). Die Größen sind in Abb. 3.14 links in grau eingezeichnet.

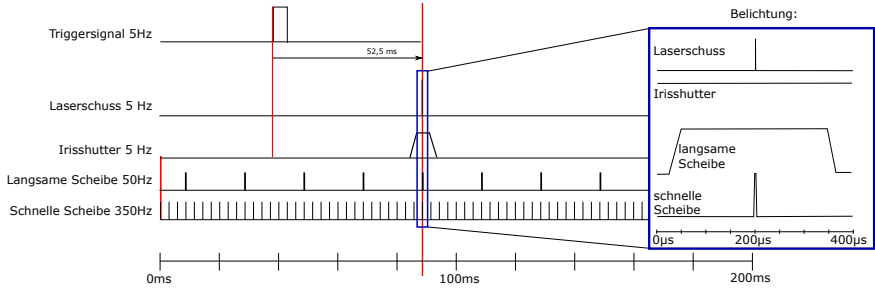
Im aktuellen Aufbau wurde die Belichtungszeit reduziert, indem der Spaltradius ( $r_u$ ) der schnellen Scheibe erhöht und die Vergrößerung in der Ebene des Zwischenbildes (zwischen LG 3 und LG 4, vgl. Abb. 3.11) auf  $V = 1$  reduziert wurden. Obwohl für eine kürzere Belichtungszeit eine Drehzahlerhöhung günstiger wäre als eine Erhöhung des Radius (Antriebsleistung  $P = f(\omega^2, r^5)$ , vgl. Gl. 3.16), wurde im aktuellen Spektrometer nur der Radius der schnellen Scheibe erhöht. Dies geschah, da es einen Bauraumkonflikt zwischen LG 3 und dem direkt darunter verbauten Motor der schnellen Scheibe gab. Die Drehzahl konnte dann aufgrund von Beschränkungen in der Bauteilfestigkeit (zu hohe Spannungen im äußeren Kerbgrund des Spalts in der schnellen Scheibe) und Motorleistung nicht erhöht werden, s. u. Sie beträgt im aktuellen Spektrometer ebenfalls 21.000 und 3000 U/min für die schnelle bzw. langsame Scheibe.

Die Spaltbreite der langsamen Scheibe beträgt  $d_l = 7,5 \text{ mm}$ , die der schnellen Scheibe  $d_s = 500 \mu\text{m}$ . Beide Spalte befinden sich auf einer unteren radialen Position von  $r_u = 66 \text{ mm}$  und haben eine Länge von  $l_l = 15 \text{ mm}$  bzw.  $l_s = 8 \text{ mm}$ . Der austauschbare stationäre Spalt vor der schnellen Scheibe ist im konvergenten Strahlengang nach LG 3 eingebaut. Er besitzt die Breite  $d_{\text{stat}} = 2,8 \text{ mm}$ . Den konvergenten Strahlen folgend, hätte er in Fokusslage zwischen LG 3 und LG 4 die virtuelle Breite  $d_{\text{stat,virt}} = 500 \mu\text{m}$  und damit die identischen Ausmaße wie der rotierende Spalt. Damit ist die Spaltbreite in der schnellen Scheibe breit genug für das Bild des laserinduzierten Streulichts im Probevolumen, das hier ca.  $200 \mu\text{m } 1/e^2$  breit ist. Durch die Reserve von  $300 \mu\text{m}$  (beidseitig  $150 \mu\text{m}$ ) ist sichergestellt, dass das Streulicht auch passieren kann, wenn der Laserstrahl in der Flamme aufgeweitet oder durch *beam steering* abgelenkt wird. Die Belichtungszeit (FWHM) beträgt  $3,4 \mu\text{s}$  (vgl. Abb. 3.14 rechts). Damit wird das Eindringen von Hintergrundlicht im Vergleich zwischen neuem und altem Spektrometer um den Faktor 3,8 reduziert.

#### Angleichen von Belichtungsfrequenz und Laserfrequenz

Die Öffnung des Strahlengangs darf nur mit der Frequenz erfolgen, mit der Streulicht erzeugt wird ( $f_{\text{Laser}} = 5 \text{ Hz}$ ). Aus der großen Drehzahl der schnellen Scheibe ergibt sich eine Öffnungsfrequenz von  $f_s = 350 \text{ Hz}$ . Um die Belichtungsfrequenz der Raman-Kamera auf die Repetitionsrate des Lasers zu reduzieren, öffnet die langsame Scheibe den Strahlengang abgestimmt auf die schnelle Scheibe mit  $f_l = 50 \text{ Hz}$  – bei jeder siebten Umdrehung der schnellen Scheibe. Ein zusätzlicher, inhärent langsam öffnender Irisshutter senkt die gesamte Belichtungsfrequenz auf  $f_{\text{gesamt}} = f_{\text{Laser}} = 5 \text{ Hz}$ . Ein Zeitschema ist in Abb. 3.15

gezeigt. (Die Limitierung auf  $f_{\text{gesamt}} = 5 \text{ Hz}$  ist der maximalen Auslesegeschwindigkeit der CCD-Raman-Kamera geschuldet.)



**Abbildung 3.15:** Zeitliches Ablaufschema: Einstellung der Belichtungsfrequenz des Spektrometers auf 5 Hz. Durch simultane Öffnung des Irisshutters (5 Hz), der langsamen Scheibe (50 Hz), der schnellen Scheibe (350 Hz) und Auslösen des Laserschusses (5 Hz) erfolgt die Belichtung.

Im aktuellen Aufbau wurden die schnelle und die langsame Scheibe räumlich getrennt (vgl. Abb. 3.11). Sie wurden direkt auf die Welle des jeweiligen Motors montiert. Die Trennung der langsamen von der schnellen Scheibe bringt jedoch auch den Nachteil mit sich, dass ein weiterer Fokus (zwischen LG 3 und LG 4) erzeugt werden muss. Das macht zwei weitere Objektive notwendig. Damit einher gehen Transmissionsverluste und aufwendigere Justage. Die überwiegenden Vorteile sind: keine Getriebeverluste und vereinfachte Konstruktion. Zusätzlich ist die Regelung der Scheiben weit weniger komplex, da die Spaltposition instantan durch einen externen Pulsgeber vorgegeben werden kann, siehe nächster Abschnitt.

### Antrieb der rotierenden Scheiben

Zur Abschätzung der benötigten Motorleistung ist der Abstand zwischen Gehäuse und rotierender Scheibe wichtig. Ein Spalt im Mittel von  $d = 2,5 \text{ mm}$  trennt Scheibe und Gehäuse voneinander. Im Vergleich zum Radius der Scheibe von  $r_s = 76 \text{ mm}$  ist der Spalt klein. Die Rotation der Scheibe verursacht eine Luftströmung im Spalt zwischen Scheibe und Gehäuse. Die notwendige Motorleistung zum Antrieb der Scheiben wird zum größten Teil für die Überwindung der Reibung innerhalb dieser Scherströmung benötigt. Die Reynolds-Zahl im Gehäuse beträgt [82, 84]:

$$\text{Re} = \frac{r_s^2 \cdot \omega}{\nu}. \quad (3.15)$$

Hierin bezeichnet die  $\omega$  Winkelgeschwindigkeit und  $\nu$  die kinematische Viskosität. Umgebendes Medium ist Luft. Damit betragen die Re-Zahlen für die langsame und schnelle Scheibe: 97.300 bzw. 681.000. Nach [82] ist die Umströmung in der langsamen Scheibe laminar (Momentenbeiwert  $C_m = 2,67 \cdot \text{Re}^{-1/2}$ ), in der schnellen turbulent (Momentenbeiwert  $C_m = 0,062 \cdot \text{Re}^{-1/5}$ ). Die Leistung  $P$  aufgrund von Reibung berechnet sich zu:

$$P = \pi \cdot N \cdot C_m \cdot \rho \cdot \omega^2 \cdot r_s^5. \quad (3.16)$$



$N$  repräsentiert hierin die Drehzahl,  $C_m$  den Momentenbeiwert,  $\rho$  die Dichte des umgebenden Mediums (Luft),  $\omega$  die Winkelgeschwindigkeit und  $r_s$  den Radius der Scheibe.

Die Motorleistung für die langsame Scheibe muss damit mindestens  $P_l > 0,3 \text{ W}$ , für die schnelle mindestens  $P_s > 44 \text{ W}$ , betragen. Aus Erfahrungswerten aus einem ähnlichen Motorsystem [104] wurde die notwendige Motorleistung deutlich höher angesetzt: Die gewählten Motoren (bürstenlose Gleichstrommotoren, Kugler Precision) besitzen eine Dauerleistung von  $P = 430 \text{ W}$ . Die Berechnung nach Gl. 3.16 lieferte zu geringe notwendige Leistungen. Dies lag hauptsächlich an der Bestimmung der Momentenbeiwerte ( $C_m$ ) aus verfügbaren Literaturquellen, die auf empirischen Untersuchungen beruhte.  $C_m$  variiert stark mit der Gehäusegeometrie und dem Spaltmaß zwischen Scheibe und Gehäuse, das im umgesetzten System aus Gründen der Fertigungstechnik nicht konstant gehalten werden konnte. Zudem mussten das Gehäuse und die Scheibe, abweichend von Literaturbeispielen, einen Spalt für den Strahlengang besitzen. Dies erhöhte  $C_m$  offenbar erheblich. Im stationären Betrieb benötigen die Motoren bei Solldrehzahl  $P_l = 33 \text{ W}$  bzw.  $P_s = 240 \text{ W}$ . Beim Anfahren der Scheiben ist die benötigte Leistung um bis zu 80 % höher. Diese Werte sind aus der gemessenen Stromstärke und der Spannung des Netzteils berechnet und beinhalten Verluste wie Lagerreibung und Regelverluste, die jedoch als klein angenommen werden.

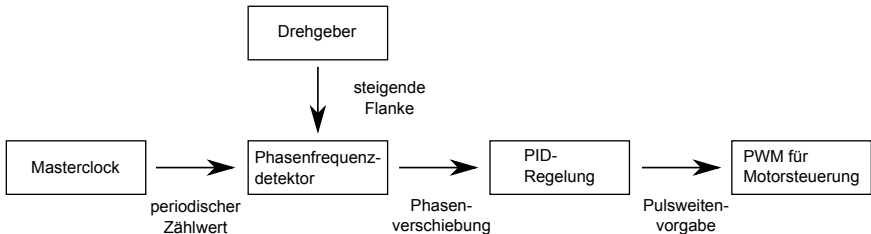
#### Regelung und Synchronisation der Komponenten

Im folgenden Abschnitt wird auf die Regelung der Scheiben des rotierenden Shutters und die zeitliche Synchronisation der Komponenten eingegangen. Wie in Abb. 3.15 angedeutet, ist die zeitliche Synchronisation der Shutter (Iris, schnelle und langsame Scheibe) und des Lasers zeitlich über mehrere Größenordnungen hinweg notwendig: Die Laserpulsdauer beträgt  $t = 500 \cdot 10^{-9} \text{ s}$ , während zwischen zwei Belichtungen eine Zeitspanne von  $t = 200 \cdot 10^{-3} \text{ s}$  vergeht. Es bestehen somit sehr große Anforderungen an die zeitliche Taktung der beteiligten Komponenten. Ein nicht vollständig geöffneter Strahlengang, z. B. durch Fehlausrichtung einer Scheibe, kann anhand der Bilddaten nachträglich nicht identifiziert werden. Er hat das Potential, das Resultat der Messung enorm zu verfälschen und ist deshalb unbedingt zu unterbinden.

Im alten Spektrometer (vgl. Kap. 3.2.3) war die schnelle Scheibe der Hauptpulsgeber des gesamten Prüfstandes. Lichtschranken erfassten die Position der Scheibe. Diese waren, wie auch die Regelungselektronik, sehr fehleranfällig. Eine zweite schnelle Scheibe vor der Rayleigh-Kamera oder in einem zweiten Spektrometer, wie in [57], wären in einem solchen System unmöglich. Im neuen Spektrometer sind die Scheiben direkt auf die Wellen der Motoren montiert. Die Trägheit des Systems und ein Getriebeispiel sind klein bzw. nicht existent. Dies hat zur Folge, dass der Hauptpulsgeber des neuen Systems nicht mehr die schnell rotierende Scheibe sein muss, sondern eine externe Uhr sein kann. Mit dieser überlegenen Systemarchitektur können dann, unabhängig von etwaigen Drehzahlschwankungen oder Fehlern in den Signalen der Lichtschranken, die Laser, Kameras und die Position des Spalts eingestellt werden. Eine weitere schnelle Scheibe kann problemlos integriert werden.

Der Taktgeber des Systems war ein FPGA (engl. *Field Programmable Gate Array*) der Firma National Instruments vom Typ CompactRIO 9074. Es wurde mit einer Taktrate von 40 MHz betrieben. Damit lieferte der Hauptpulsgeber (Masterclock) des Systems alle 25 ns ein Referenzsignal. Aus diesem schnellen Signal wurde durch Zählung ein Triggersignal mit  $f = 5 \text{ Hz}$  generiert (vgl. Abb. 3.15). Dieses wurde dann im Bereich von Millisekunden verzögert und triggerte Laser, Kameras und Energiereferenz.

Für die Regelung der schnellen und langsamen Scheibe wurde eine Pulsweitenmodulation (PWM) des Steuersignals vorgenommen. Die Spannung für die Motorspulen wurde dann mithilfe der Pulsweitenmodulation in den Steuergeräten (Accelnet, ADP-090-36) eingestellt. Als Eingangssignal für den Phasenfrequenzdetektor auf dem FPGA diente sowohl der X-Encoder des Drehgebers auf der Motorachse, der einmal pro Umdrehung ein Signal ausgab, als auch die Masterclock. Die Regelung erfolgte mittels eines eigens programmierten PID-Reglers auf dem FPGA [47, 80]. Die Steuerung wurde mit der Software *Labview* (National Instruments) umgesetzt. In Abb. 3.16 ist der Ablauf der Regelung schematisch dargestellt.



**Abbildung 3.16:** Regelschema zur Pulsweitenmodulation (PWM) der Spannung für die Bestromung der Motoren.

### 3.3.4 Thermisches Management

In diesem Abschnitt wird die Regulierung des Wärmeeintrags und der Wärmeabfuhr aus dem Spektrometer besprochen. Die Vermessung einer kompletten turbulenten Flamme wie der MHF (vgl. Kap. 4.2) dauert mehrere Stunden. Über diesen Zeitraum ist eine identische Abbildung des Streulichts auf den Kameras zu gewährleisten. Der kritischste Aspekt, der zu einem Drift der Abbildung führen kann, ist der Wärmeeintrag in das Spektrometer. Durch instationäre Erwärmung einzelner Komponenten, z. B. der Objektive, kommt es zu Wärmedehnung und veränderter Strahlführung. Wie in Kap. 3.4.1 erläutert, kann das spektral zerlegte Streulicht auf einen anderen Bereich des CCD-Chips fallen und fälschlicherweise einer anderen Spezies zugeordnet werden. Daher muss der Wärmeeintrag in das Spektrometer minimiert werden. So sind die Rayleigh- und Raman-Kamera außerhalb des Gehäuses montiert, sodass die Abwärme der zwangsventilierten Kameras in die Laborluft abgegeben wird. Alle optischen Komponenten (LG 2.1 bis LG 5, Strahlteiler, Filter) sind auf einer Schiene montiert (vgl. Abb. A.3 in Anhang A). So ist bei Auftreten eines thermischen Drifts die relative Verschiebung der optischen Komponenten zueinander gering.

Die schnelle und die langsame Scheibe müssen sich innerhalb des Spektrometers befinden, um die Belichtung zu steuern. Die Komponenten zur Kühlung der schnellen Scheibe sind in Abb. A.2 in Anhang A gezeigt. Die aufgebrachte Motorleistung dissipiert nahezu komplett in Wärme. Das bedeutet, dass direkt unter und neben LG 3 und LG 4 ca. 240 W thermisch eingekoppelt werden. Hier ist eine Kühlmanschette um das Motorgehäuse sowie am Deckel der Scheibe angebracht. Kühlwasser mit ca.  $T = 15^\circ\text{C}$  durchströmt sie.

Da nicht alle Komponenten mit Wasser gekühlt werden können (Bauraumbeschränkungen, Dichtigkeit), wird die Vorderseite des Gehäuses der schnellen Scheibe (nach LG 3)

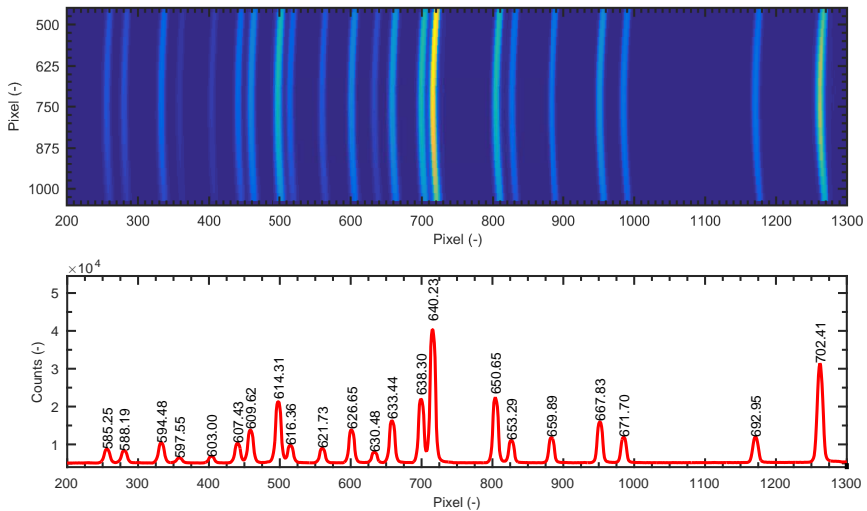
mit einem langsamen Luftstrom überstrichen. Er wird durch ein darunter montiertes Pleum und eine Sinterbronze zur Strömungsberuhigung eingeleitet. Schnell strömende Luft im Strahlengang wurde nach Möglichkeit vermieden, um *beam steering* durch Dichtegradienten zu verhindern. Genauso wird die Rückseite der langsamen Scheibe (vor LG 2.1) luftgekühlt. Die Luftströme transportieren die Oberflächenwärme der Scheibengehäuse ab. Sie sind mit Kompressorluft gespeist. Damit sich die erwärmte Kühleuft nicht unkontrolliert im gesamten Gehäuse des Spektrometers ausbreiten kann, wird sie kanalisiert und über Kamine, die oberhalb der Scheibengehäuse montiert sind, abgesaugt. Die Druckbilanz im Spektrometer, durch zuströmende und abgesaugte Luft, wird auf einen sehr geringen Überdruck im Gehäuse eingestellt. So wird der Staubeintrag in das Spektrometergehäuse minimiert und der empfindliche Irisshutter direkt nach der langsamen Scheibe nicht mit einem starken Luftstrom beaufschlagt.

### 3.3.5 Leistungsfähigkeit des neu gebauten Spektrometers

Im folgenden Abschnitt wird die Leistungsfähigkeit des neuen Spektrometers anhand von Messungen der Dispersion, des eindringenden Hintergrundleuchtens und der Regelgüte dargestellt.

#### Dispersion

In Abb. 3.17 ist das Spektrum einer Neonlampe (LOT-Oriel) gezeigt. Es zeigt das Abbild durch einen 100  $\mu\text{m}$  breiten Schlitz. Die daraus berechnete mittlere Dispersion beträgt 5,83 nm/mm. Sie liegt damit im Bereich der Auslegung.

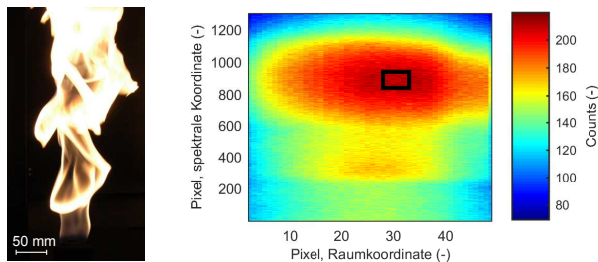


**Abbildung 3.17:** Spektrum der Neonlampe auf der Raman-Kamera, gemessen durch einen 100  $\mu\text{m}$  breiten Schlitz. Oben: Rohbild; unten: Maximalwerte des Spektrums in der Mitte des Kamerachips. Zahlenwerte geben Wellenlängen in nm an.

### Unterdrücken des Hintergrundleuchtens

Durch die kürzere Öffnungszeit des neuen Spektrometers (vgl. Kap. 3.3.3) kann weniger Hintergrundlicht auf die Raman-Kamera fallen. Weniger Rauschen verfälscht dadurch das Nutzsignal. Es wurde eine hell leuchtende, nicht vorgemischte Methanflamme über dem stratifizierten Brenner entzündet (vgl. Abb. 3.18 links), um diesen Effekt zu quantifizieren. Dies geschah, indem das Spektrum des Flammenleuchtens mit neuem und altem Spektrometer gemessen wurde. Da der Anregungslaser nicht feuerte, ist keine Raman-Streuung zu sehen (vgl. Abb. 3.18, rechts). Spektral detektiert die Kamera bei  $\lambda \approx 660 \text{ nm}$  das hellste Flammenleuchten.

Im Vergleich zum alten Spektrometer gelangt beim neuen ca. Faktor sechs weniger Hintergrundleuchten auf die Kamera.



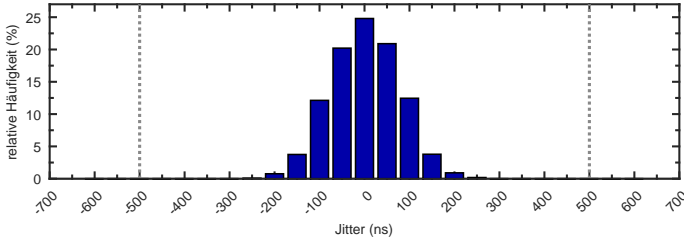
**Abbildung 3.18:** Links: Fotografie der stark lumineszierenden Flamme über dem stratifizierten Brenner (nicht vorgemischte Methanflamme aus Ring 1). Rechts: Exemplarische, spektral aufgelöste Aufnahme des Flammenleuchtens auf der Raman-Kamera im alten Spektrometer (dunkelbildbereinigt, ohne Laser). Im Bereich des stärksten Leuchtens (schwarzes Kästchen, bei  $\lambda \approx 660 \text{ nm}$ ) ist das detektierte Hintergrundlicht zwischen neuem und altem Spektrometer verglichen.

Die Berechnung erfolgte unter Einbeziehung der unterschiedlichen Vergrößerung, der spektralen Dispersion, des Binnings, der Transmission und der Anzahl der Objektive. Die Messungen zum Hintergrundlicht wurden mit noch nicht perfekter Justage der optischen Elemente im Spektrometer durchgeführt. Daher wird angenommen, dass die Reduktion des Hintergrundlichts stärker war, als theoretisch vorhergesagt (Faktor 3,8, vgl. Abb. 3.14 rechts). Wichtig ist ebenfalls das erzielbare Signal-zu-Rausch-Verhältnis für einzelne chemische Spezies. Es wurde bisher mit dem neuen Spektrometer noch nicht bestimmt.

### Regelgüte der schnellen Scheibe

Die Synchronität von Laserschuss und Öffnung des Strahlengangs durch die schnelle Scheibe ist eminent wichtig, um Teilbelichtung und Verfälschung der Raman-Messung zu verhindern. Zur Überprüfung der Regelgüte für die Spaltposition der schnellen Scheibe wurde in Vorversuchen eine Hochgeschwindigkeitskamera (Phantom V711, Belichtungszeit  $t = 1 \mu\text{s}$ ) auf die schnelle Scheibe gerichtet [47]. Der Spalt wurde rückseitig homogen beleuchtet. Hochgeschwindigkeitskamera und Scheibe wurden mit dem gleichen FPGA-System getriggert, das im Regelbetrieb die Raman-/Rayleigh-Messung steuert. Die Aufnahmen der Hochgeschwindigkeitskamera zeigten die Position des Spalts der schnellen Scheibe zu dem Zeitpunkt, an dem der Strahlengang geöffnet sein sollte. Die örtlichen Fluktuationen des Spalts auf den Bildern konnten dann in eine zeitliche Verschiebung des tatsächlichen zum gewünschten Öffnungszeitpunkt (d. h. Jitter) übersetzt werden (vgl.

Abb. 3.19). Die Aufnahme­frequenz betrug 2,5 Hz. Die Statistik wurde über 500 Schuss erstellt.



**Abbildung 3.19:** Zeitliche Verschiebung des tatsächlichen zum gewünschten Öffnungszeitpunkt der schnellen Scheibe (d. h. Jitter). Häufigkeitsverteilung aus Bildern der Hochgeschwindigkeitskamera (Phantom V711, Belichtungszeit  $t = 1 \mu\text{s}$ ) bei 500 Schuss Stichprobengröße und 2,5 Hz Aufnahme­frequenz [47]. Maximal erlaubter Jitter von  $t = \pm 500 \text{ ns}$  (grau gepunktet Linien) wird deutlich unterschritten.

Die Messung zeigt, dass der Öffnungszeitpunkt symmetrisch um den gewünschten Zeitpunkt verteilt ist. In 25 % der Fälle beträgt der Jitter weniger als  $\pm 50 \text{ ns}$ . In keinem Fall liegt er weiter als  $t = \pm 250 \text{ ns}$  vom gewünschten Zeitpunkt entfernt. Das ist deutlich unter dem erlaubten Limit von ca.  $t = \pm 500 \text{ ns}$ . Die „erlaubte“ zeitliche Abweichung wurde konservativ abgeschätzt, da sie von der Größe und Position des Raman-Streubildes auf Höhe der schnellen Scheibe abhängt. Die Größe und Position wiederum ist eine Funktion der schwer vorherzusagenden Stärke des *beam steering* und der Strahlaufweitung in der Flamme sowie vom *Pointing* des Laser. Trotz sehr anspruchsvoller Anforderungen an die Regelgüte der schnellen Scheibe kann das Regelsystem den erlaubten Jitter voll einhalten.

#### Fazit

Im vorangehenden Unterkapitel wurde das Neudesign des Transmissionsspektrometers beschrieben: In der optischen Auslegung wurde die Auswahl der verbauten Objektive getroffen sowie Messungen zur Transmission, Auflösung und Modulation durchgeführt. Das System der rotierenden Shutter zur Einstellung einer sehr kurzen Belichtungszeit und passenden Belichtungs­frequenz wurde besprochen. Die Strategie zur Regelung und zeitlichen Synchronisierung der Komponenten wurde vorgestellt. Die finale, umgesetzte Konstruktion ist in Anhang A gezeigt.

Das neu designte und anschließend gebaute Spektrometer erfüllt in Bezug auf Dispersion ( $d\lambda/dx = 5,83 \text{ nm/mm}$  im Bereich von  $\lambda = 550 \text{ nm}$  bis  $700 \text{ nm}$ ), räumlicher Auflösung (kombiniert ca.  $60 \mu\text{m}$  Auflösungsgrenze), Hintergrundunterdrückung (ca. Faktor 6 höher als im alten Spektrometer) und Regelgüte der Belichtungszeit ( $t_{\text{Jitter}} < 250 \text{ ns}$ ) voll seine Anforderungen. Die Gesamttransmission liegt bei  $\lambda = 633 \text{ nm}$  bei ca. 78 %. Die Langzeitstabilität der Komponenten wurde erfolgreich getestet. Die Versuche zum erzielbaren SNR für chemische Spezieskonzentrationen mit kombinierter Raman-/Rayleigh-Spektroskopie stehen noch aus. Nach diesen abschließenden Tests steht das neue Spektrometer als Kernstück der Detektionsseite des Prüfstands zur Verfügung. Durch kurze Belichtungszeiten ( $t_{\text{FWHM}} = 3,4 \mu\text{s}$ ) können nun auch Flammen mit stark ausgeprägter Luminosität mit kombinierter Raman-/Rayleigh-Spektroskopie vermessen werden. Die Erweiterung der Raman-Seite durch einen zusätzlichen Strahlteiler und ein weiteres Transmissionsgitter zur höheren Auflösung des Spektralbereichs ist vorbereitet.

### 3.4 Auswertung der Messdaten

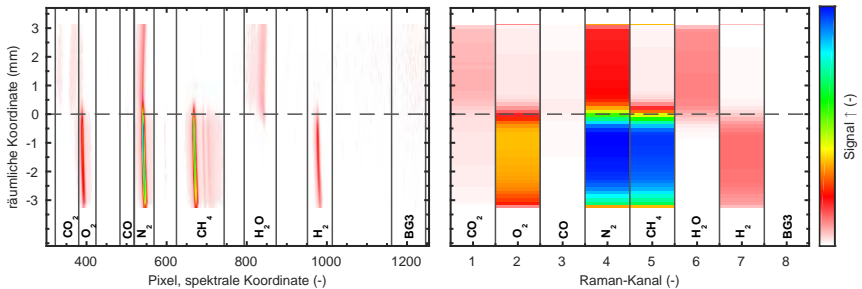
Im folgenden Abschnitt wird auf die Auswertung der Messdaten eingegangen. Der Fokus liegt auf der Bilddatenauswertung der kombinierten Raman- und Rayleigh-Messung. Sie hat die Bestimmung der Temperatur und der Spezieskonzentrationen entlang des eindimensionalen, ca. 6 mm langen Probevolumens zum Ziel. Dabei wird gezeigt, wie die Bilddaten bei der Messung anfallen und auf welche Weise anschließend die Berechnung der Zielgrößen erfolgt. Die notwendige Kalibration des Messsystems mit Reingasen und einfachen Flammen wird ausführlich besprochen. Die erreichbare Akkuratheit und Präzision der Messtechnik sowie der praktische Umgang mit Drifts im Signal über eine gesamte Messung hinweg wird dargelegt. Anschließend wird die Auswertung der Daten der OH-PLIF-Messtechnik demonstriert.

#### 3.4.1 Berechnung der Temperatur und Spezieskonzentrationen

Im folgenden Abschnitt wird die theoretische Grundlage der Auswertung der Messdaten aus der kombinierten Raman- und Rayleigh-Messung mittels der hybriden Matrix-Inversion (MI) beschrieben ([25–27]). Dazu wird zunächst auf den spektroskopischen Hintergrund eingegangen. Weitere Eingangsgrößen für die MI sind die Apparatefunktion und die Dispersionsfunktion des Messsystems. Aus den simulierten Raman-Spektren werden theoretische Antwortfunktionen für die Spezies erstellt. Damit können anschließend in der MI die Temperatur und die chemischen Spezieskonzentrationen entlang des Probevolumens berechnet werden.

#### Aufnahme der Messdaten

In Abb. 3.20 links ist eine typische Aufnahme der Raman-Streuung zu sehen, wie sie während der Messung in einer Flamme auf den CCD-Chip der Kamera trifft.



**Abbildung 3.20:** Exemplarisches Signal auf der Raman-Kamera des gleichen Ereignisses: spektral aufgelöst (links) und gebinnt (rechts). Das Probevolumen erstreckt sich über ca. 6 mm Länge (in der räumlichen Koordinate). Die Aufnahmen zeigen den Schnitt durch eine ebene Flammenfront (auf Höhe der horizontalen grau gestrichelten Linie – unverbranntes Gemisch bei einer räumlichen Koordinate < 0 mm). Für die verwendete Methode der Auswertung wird das Rohsignal (links), das auf die einzelnen Raman-Kanäle (markiert durch vertikale Linien) fällt, auf dem CCD-Chip akkumuliert (d. h. gebinnt). Das Ergebnis entspricht dem Bild rechts. Die Information der Einzelspektren (d. h. das Rohsignal, links) geht verloren. Im Bereich von BG3 (engl. *background*) wird das Level der Hintergrundstrahlung aufgenommen.

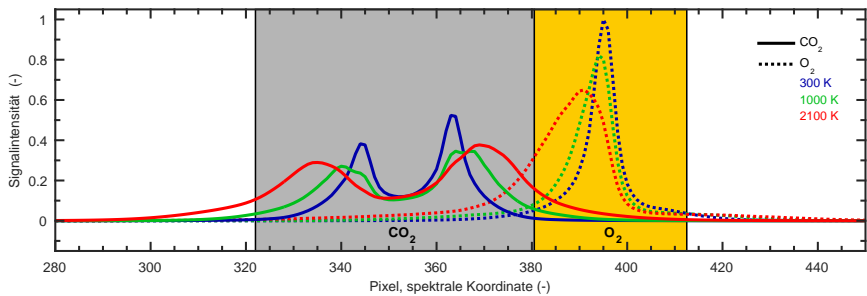
Den chemischen Hauptspezies werden, entsprechend der Wellenlänge der Raman-Streuung, sogenannte Kanäle (d. h. Pixelbereiche in spektraler Richtung) zugewiesen. Innerhalb dieser Bereiche wird das Signal spektral akkumuliert (d. h. gebinnt), noch bevor es digitalisiert wird. Das so entstehende Bild ist in Abb. 3.20 rechts gezeigt. Durch dieses Vorgehen kann das Ausleserauschen der Kamera reduziert und damit die Präzision der Messung erheblich verbessert werden [25]. Die Auslesezeit verringert sich um bis zu einer Größenordnung. Zur Auswertung der Daten liegt ausschließlich nur noch das gebinnnte Bild vor. Das räumliche Binning beträgt im gezeigten Bild 10 Pixel, entsprechend einer Auflösung von ca. 150  $\mu\text{m}$  im Probevolumen.

In Tab. 3.2 sind die Wellenlängenbereiche der verwendeten Detektionskanäle aufgeführt. Die Bezeichnung für die Kanäle entspricht der Spezies, die in dessen Wellenlängenbereich hauptsächlich emittiert.

**Tabelle 3.2:** Kanäle der einzelnen Spezies auf der Raman-Kamera. In dem genannten Wellenlängenbereich wird die Signalintensität vor dem Auslesen akkumuliert (d. h. gebinnt).

Kanal	Wellenlänge (nm)	
Rayleigh	529,6	- 553,0
C2	553,7	- 566,8
CO <sub>2</sub>	567,5	- 578,0
O <sub>2</sub>	578,0	- 583,9
CO	596,6	- 602,8
N <sub>2</sub>	603,1	- 611,8
CH <sub>4</sub>	621,9	- 642,7
H <sub>2</sub> O	651,6	- 665,2
H <sub>2</sub>	678,8	- 689,5
BG3	689,8	- 699,2

Abseits der Kanäle für die einzelnen Spezies existieren weitere: Auf den Rayleigh-Kanal trifft Rayleigh-Streulicht, das trotz Strahlteiler und Filter bis auf die Raman-Kamera fällt. Im Kanal C2 werden Interferenzen aus laserinduzierter Fluoreszenz detektiert. Innerhalb des Hintergrundkanals BG3 ist keine Raman-Streuung zu erwarten. Dieser Kanal kann zur Korrektur des Hintergrundlichts verwendet werden.



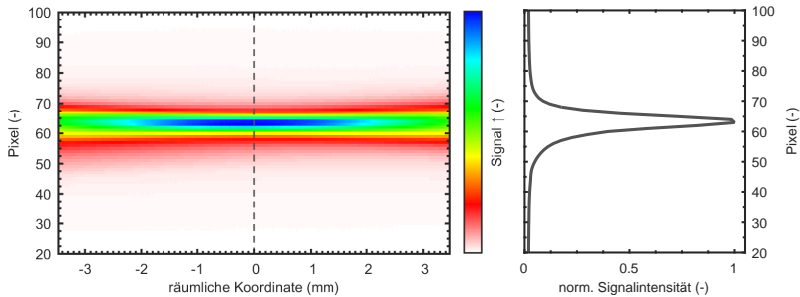
**Abbildung 3.21:** Übersprechen der Raman-Signale von CO<sub>2</sub> (durchgezogene Linien) und O<sub>2</sub> (gepunktete Linien) bei drei verschiedenen Temperaturniveaus (300, 1000 und 2100 K), gezeigt anhand synthetisch erzeugter Spektren. Die Kanäle der Spezies auf dem Kamerachip sind als graues bzw. gelbes Rechteck markiert: Das Signal, das in einen Kanal fällt, wird der entsprechenden Spezies zugeordnet.

Die Raman-Streuung der relevanten Spezies liegt teilweise bei identischen Wellenlängen. In Abb. 3.21 ist das Übersprechen von  $\text{CO}_2$  auf  $\text{O}_2$  ( $\text{O}_2 \ll \text{CO}_2$ ) und  $\text{O}_2$  auf  $\text{CO}_2$  ( $\text{CO}_2 \ll \text{O}_2$ ) gezeigt. So ist eine spektrale Auftrennung des Signals, das auf räumlich separierten Bereichen des Kamerachips detektiert werden soll, nicht möglich. Dieses gegenseitige Übersprechen der Raman-Streuung einzelner Spezies aufeinander muss später korrigiert werden.

### Apparatefunktion

Die optischen Elemente (Linsengruppen, Strahlteiler, Filter; vgl. z.B. Abb. A.3 in Anhang A), die zwischen Objekt (d. h. Laserfokus im Probevolumen) und dem Bild (Abbildung auf der Kamera) liegen, beeinflussen dessen Darstellung. Daher ist es nötig, eine Abbildungsvorschrift zu erstellen, die festlegt, wie das Objekt (Streulicht des Lasers) durch das Spektrometer auf der Raman-Kamera abgebildet wird. Diese Abbildungsvorschrift wird als Apparatefunktion bezeichnet.

In erster Näherung wird zunächst das Bild der Rayleigh-Streuung auf der Rayleigh-Kamera als Apparatefunktion verwendet (vgl. Abb. 3.22, links). Diese Näherung ist gerechtfertigt, da das Rayleigh-Streulicht einen großen Teil der gleichen strahlführenden Optiken durchläuft wie das Raman-Streulicht. Außerdem wird die angenommene Apparatefunktion für die Raman-Seite im Anschluss daran iterativ modifiziert. Dies geschieht über den Abgleich des  $\text{N}_2$ -Spektrums aus einer ungebinnten Aufnahme mit dem berechneten Spektrum. Die Berechnung erfolgt über die Faltung des quantenmechanisch simulierten Spektrums (Breite: 1 Pixel) mit der vorläufigen Abbildungsfunktion. Stimmen Breite und Magnitude des so generierten Spektrums in ihrem räumlichen Verlauf über das Probevolumen schließlich mit dem experimentell bestimmten Verlauf überein, ist die Optimierung abgeschlossen.



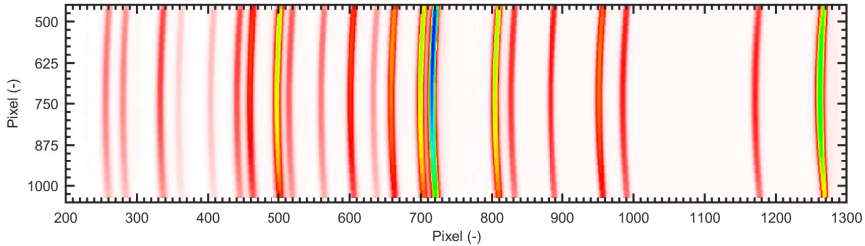
**Abbildung 3.22:** Rayleigh-Streulicht in Luft (links) als erste Näherung für die Apparatefunktion der Raman-Seite. Auf Höhe der grau gestrichelten Linie (links) ist exemplarisch die normierte Signalintensität über der Bildhöhe aufgetragen (rechts). Diese entspricht hier in der ersten Iteration der Apparatefunktion.

### Dispersion

Eine weitere Eingangsgröße für die Simulation des erwarteten Raman-Signals ist die Dispersion. Diese beschreibt die Zuordnung einer Wellenlänge zu jedem einzelnen Pixel auf dem Chip der Raman-Kamera und wird in tabellierter Form übergeben. Zur experimentellen Bestimmung der Dispersion wird in das Probevolumen der späteren Messung



eine Neon-Niederdruck-Entladungslampe positioniert (LOT-Oriel) [44]. In Abb. 3.23 ist das Spektrum der Neonlampe gezeigt.



**Abbildung 3.23:** Spektrum der Neonlampe auf der Raman-Kamera, gemessen durch ein 100  $\mu\text{m}$  breiten Schlitz.

Durch einen Spalt mit 100  $\mu\text{m}$  Höhe wird das Licht in die Detektionsseite geleitet und dort spektral zerlegt. Durch die bekannten Wellenlängen der Emissionslinien ([68]) wird über ein Polynom dritter Ordnung zwischen den Linien interpoliert und in den Randbereichen extrapoliert. Die optische Krümmung der Spektrallinien (sog. *bowing*, vgl. [110]) wird in der verwendeten Methode inhärent berücksichtigt.

### Simulierte Raman-Spektren

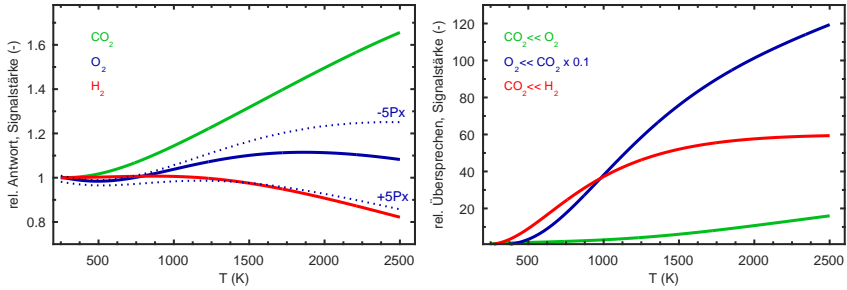
Basis der Auswertung mittels der hybriden MI ist die Simulation der rovibratorischen Raman-Spektren relevanter di- und triatomarer Spezies. Dies geschieht mit der Software *Raman Scattering Experiment Simulator* (RAMSES) [26, 30], die quantenmechanische Modelle verwendet. In dieser Arbeit wurde RAMSES so verwendet, dass die simulierten Spektren mit einer angenommenen Abbildungsfunktion von nur einem Pixel Breite gefaltet wurden (sog. *stick spectra*). Die finale Faltung mit der Apparatefunktion des Spektrometers und der Zuordnung der Kamerapixel zu einer Wellenlänge erfolgte wegen der größeren Flexibilität der Software in MATLAB. Die mit RAMSES erzeugten Spektren enthalten die zu erwartende Signalintensität für die Spezies  $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2$  im Temperaturbereich von  $T = 250\text{ K}$  bis  $2500\text{ K}$  in Schritten von  $10\text{ K}$ . Die spektrale Diskretisierung erfolgt auf einem virtuellen Kamerachip mit einer Breite von 6500 Pixeln. Für  $\text{CH}_4$  können keine Spektren simuliert werden, da keine adäquaten quantenmechanischen Modelle existieren.

### Tabellierte Antwort- und Übersprechfunktionen

Aus den simulierten Raman-Spektren, der Apparatefunktion und der Dispersion werden nun für jede Spezies und jedes Übersprechen Antwortfunktionen generiert: Diese Antwortfunktionen quantifizieren die erwartete temperaturabhängige Signalintensität für jeden Raman-Kanal.

In Abb. 3.24 sind ausgewählte Antwortfunktionen und Übersprechfunktionen gezeigt. Die Kurven sind auf das Signal bei  $T = 290\text{ K}$  normiert. Die Antwortfunktionen werden zusätzlich für eine spektrale Verschiebung der Spektren um bis zu  $\pm 5$  Pixel (Schrittweite: 1 Pixel) berechnet. Eine derartige spektrale Verschiebung des Raman-Streulichts findet

statt, wenn während der Messung die Position des Laserfokus vertikal (d. h. orthogonal zur Ausbreitungsrichtung des Lasers) verschoben wird. Diese kann durch einen Drift, *beam steering* oder *pointing* des Lasers verursacht werden. Durch die Tabellierung der Antwortfunktionen abhängig von der Strahlage des Lasers kann in der Auswertung diese Verfälschung korrigiert werden. Dies geschieht, indem aus dem Bild der Rayleigh-Kamera die Position des Lasers für jedes Bild bestimmt wird. Mit dieser Lageinformation wird dann die um die entsprechende Pixelzahl verschobene Tabelle der Antwortfunktion ausgewählt.



**Abbildung 3.24:** Temperaturabhängige Antwortfunktionen der Spezies  $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$  und  $\text{H}_2$  (links) und Übersprechfunktionen  $\text{CO}_2 \ll \text{O}_2$ ,  $\text{O}_2 \ll \text{CO}_2$  und  $\text{CO}_2 \ll \text{H}_2$  (rechts). Für  $\text{O}_2$  ist exemplarisch die erhebliche Veränderung der Antwortfunktion bei Verschiebung des Spektrums um  $\pm 5$  Pixel eingezeichnet.

Wegen des großen Überlapps der Spektren kommt dem Übersprechen  $\text{O}_2 \ll \text{CO}_2$  eine besonders große Bedeutung zu (vgl. Abb. 3.21).

Der Großteil der Antwort- und Übersprechfunktionen beruht auf quantenmechanisch simulierten Spektren. Für die Antwortfunktion von  $\text{CH}_4$  und einige Übersprechfunktionen von  $\text{CH}_4$  und  $\text{H}_2\text{O}$  auf andere Spezies wurde auf empirisch bestimmte Polynomfunktionen 5. Grades zurückgegriffen [9]. Diese erwiesen sich aufgrund der Limitierung des quantenmechanischen Modells und Einflüssen des Messaufbaus für diese Moleküle als zutreffender.

### Berechnung der Temperatur und Spezieskonzentrationen

Das detektierte Signal  $S$  auf der Raman-Kamera für jede Spezies  $i$  im entsprechenden Kanal lässt sich nach Gl. 3.17 beschreiben.

$$S_i = c_{ij}(T)N_j. \quad (3.17)$$

Dabei repräsentieren die Diagonalelemente  $c_{ii}$  der Matrix  $c$  die Raman-Antwortfunktionen und die Nichtdiagonalelemente  $c_{ij}$  die Übersprechfunktionen der Spezies  $j$  auf Spezies  $i$  (z. B.  $c_{2,1}$  entspricht  $\text{O}_2 \ll \text{CO}_2$ ). Die Berechnung der Zielgrößen – Temperatur ( $T$ ) und Spezieskonzentrationen ( $N_j$ ) – erfolgt durch Inversion der Gl. 3.17:

$$\begin{bmatrix} N_{\text{CO}_2} \\ N_{\text{O}_2} \\ N_{\text{CO}} \\ N_{\text{N}_2} \\ N_{\text{CH}_4} \\ N_{\text{H}_2\text{O}} \\ N_{\text{H}_2} \\ N_{\text{COLIF}} \\ \tilde{N}_{\text{C}_2} \\ \tilde{N}_{\text{BG}_3} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} c_{1,1} & c_{1,2} & & & c_{1,5} & c_{1,6} & c_{1,7} & & c_{1,9} & c_{1,10} \\ c_{2,1} & c_{2,2} & & & c_{2,5} & c_{2,6} & c_{2,7} & & c_{2,9} & c_{2,10} \\ & & c_{3,3} & c_{3,4} & c_{3,5} & & c_{3,7} & & c_{3,9} & c_{3,10} \\ & & c_{4,3} & c_{4,4} & c_{4,5} & & & & c_{4,9} & c_{4,10} \\ & & & & c_{5,5} & c_{5,6} & & & c_{5,9} & c_{5,10} \\ & & & & & c_{6,6} & c_{6,7} & & c_{6,9} & c_{6,10} \\ & & & & & c_{7,6} & c_{7,7} & & c_{7,9} & c_{7,10} \\ c_{8,1} & & & & & & & c_{8,8} & c_{8,10} & \\ & & & & c_{9,5} & & c_{9,7} & & c_{9,9} & c_{9,10} \\ & & & & & & & & c_{10,10} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} S_{\text{CO}_2} \\ S_{\text{O}_2} \\ S_{\text{CO}} \\ S_{\text{N}_2} \\ S_{\text{CH}_4} \\ S_{\text{H}_2\text{O}} \\ S_{\text{H}_2} \\ S_{\text{COLIF}} \\ S_{\text{C}_2} \\ S_{\text{BG}_3} \end{bmatrix} \quad (3.18)$$

Soweit aufgenommen, steht  $S_{\text{COLIF}}$  für das Signal auf der CO-LIF-Kamera.  $\tilde{N}_{\text{C}_2}$  und  $\tilde{N}_{\text{BG}_3}$  (Signal auf dem Hintergrundkanal) stellen keine physikalischen Spezieskonzentrationen dar,  $c_{ij}$  ohne Eintragung existieren physikalisch nicht bzw. sind ohne Relevanz für die Auswertung. Gl. 3.18 wird entlang des Probevolumens für jeden räumlichen Diskretisierungsschritt (ca. 150  $\mu\text{m}$ ) gelöst.

Die benötigte, aber zunächst unbekannte Temperatur  $T$  (hier  $T_{\text{Ray}}$ ) wird initial, nach Gl. 3.19, aus dem simultan erstellten Bild der Rayleigh-Kamera  $S_{\text{Ray}}$  abgeschätzt.

$$T_{\text{Ray}} = T_{\text{Ray,ref}} \cdot \frac{S_{\text{Ray,ref}} \cdot \sigma_{\text{Ray}}}{\sigma_{\text{Ray,ref}} \cdot S_{\text{Ray}}} \quad (3.19)$$

Der effektive Rayleigh-Streuquerschnitt  $\sigma_{\text{Ray}}$  setzt sich aus einer Linearkombination der Streuquerschnitte der vorliegenden Spezies im Probevolumen zusammen ( $\sigma_{\text{Ray}} = \sum \sigma_{\text{Ray},j} \cdot N_j$ ). Er ist eine Funktion der ebenfalls unbekannten Gaszusammensetzung. Daher wird zunächst ein bekannter Rayleigh-Streuquerschnitt ( $\sigma_{\text{Ray,ref}} = \sigma_{\text{Ray}}$ ) bei einer Referenztemperatur  $T_{\text{Ray,ref}}$  und dem Referenzsignalbild  $S_{\text{Ray,ref}}$  angenommen, um  $T$  initial zu bestimmen.

Die Lösung von Gl. 3.18 erfolgt dann iterativ, indem aus der aktualisierten Gemischzusammensetzung ( $N_j$ , d. h. Ergebnis der Gl. 3.18) ein neuer effektiver Rayleigh-Streuquerschnitt bestimmt wird. Mit diesem wird eine aktualisierte Temperatur berechnet ( $T$ , d. h. Ergebnis der Gl. 3.19). Wird das Konvergenzkriterium erfüllt ( $\Delta T < 1\text{ K}$  zwischen zwei Iterationsschritten), bricht die Iteration ab. Gewöhnlich sind maximal 10 Iterationsschritte notwendig, um die finale Temperatur und die Spezieskonzentrationen zu berechnen.

Die Berechnung der Temperatur kann auch ohne Verwendung des Rayleigh-Signals nach dem idealen Gasgesetz (vgl. Kap. 2.2) durchgeführt werden. Der Vergleich der Temperaturen, berechnet jeweils aus dem Rayleigh-Streulicht  $T_{\text{Ray}}$  und aus dem Ramansignal  $T_{\text{pg}}$  (engl. *perfect gas law*), erlaubt eine Bewertung der Güte der Ergebnisse, vgl. Kap. 3.4.3.

## Zusammenfassung

Im vorherigen Abschnitt wurde dargestellt, wie aus den simultan erstellten Bildern der Raman- und Rayleigh-Streuung mittels der hybriden Matrix-Inversionsmethode die Temperatur und die Spezieskonzentrationen entlang des 1-D-Probevolumens berechnet werden: Unter Verwendung der Apparatefunktion und der Dispersion des Spektrometers können mithilfe eines quantenmechanischen Modells die Raman-Spektren der relevanten Spe-

zies erzeugt werden. Aus diesen werden im Anschluss temperaturabhängige Antwort- und Übersprechfunktionen der einzelnen Spezies berechnet und in Matrixschreibweise notiert. Durch die Inversion dieser Matrix und Multiplikation mit dem Raman-Signalvektor können iterativ die Zielgrößen errechnet werden. Dabei wird bei jedem Iterationsschritt die Temperatur mittels des Signals des Rayleigh-Streulichts aktualisiert.

### 3.4.2 Vorbereitung der Eingangsdaten für die Matrix-Inversion

In diesem Abschnitt wird die Bearbeitung der Bilddaten der Raman- und Rayleighkamera beschrieben, die vor der MI zur Berechnung der Temperatur und Spezieskonzentration stattfindet. Die Kriterien, nach welchen Rohbilder verworfen werden, sind aufgeführt.

#### Dunkelbildabzug, Hintergrundkorrektur und Energiereferenz

Die Rohbilder der Raman-Kamera werden mit einem gemittelten Dunkelbild um einen zeitlichen Driftfaktor und um einen energieabhängigen Faktor korrigiert. Die Berechnung der korrigierten Intensität  $I_{\text{cor}}$  für jedes Bild erfolgt nach Gl. 3.20.

$$I_{\text{cor}} = I_{\text{raw}} - \bar{I}_{\text{dark}} - S_{\text{bgr\_drift}} - F_{\text{add\_dark}} \cdot E_{\text{Laser}}. \quad (3.20)$$

Dabei ist  $I_{\text{raw}}$  das Rohbild,  $\bar{I}_{\text{dark}}$  das gemittelte Dunkelbild,  $S_{\text{bgr\_drift}}$  der Korrekturfaktor für den Hintergrunddrift,  $F_{\text{add\_dark}}$  der laserenergieabhängige Korrekturfaktor und  $E_{\text{Laser}}$  die momentane Schussenergie des YAG-Lasers.

Das Dunkelbild quantifiziert das Dunkelstromrauschen des CCD-Chips der Kamera. Zur Bestimmung von  $\bar{I}_{\text{dark}}$  wird im Abstand von ca. 60 min eine Serie von 100 Dunkelbildern erstellt. Dabei werden Laser und Zielflamme ausgeschaltet, die restlichen Einstellungen (Belichtungszeit, Auslesezeit, Bildfrequenz etc.) bleiben wie in der tatsächlichen Raman-/Rayleigh-Messung. Die Dunkelbilder werden anschließend gemittelt.

Mit  $S_{\text{bgr\_drift}}$  wird der thermische (oder anderweitige) Hintergrunddrift der Raman-Kamera kompensiert. Der Wert für  $S_{\text{bgr\_drift}}$  wird aus Luftaufnahmen bestimmt, indem das Signal auf dem Raman-Kanal von  $\text{CH}_4$  (vgl. Abb. 3.20 und Tab. 3.2) zu null korrigiert wird. Dann werden, entsprechend der Größe des Binnings auf den einzelnen Raman-Kanälen, auch alle anderen Kanäle mit diesem Wert berichtigt. Die Luftaufnahmen werden, genau wie die Dunkelbilder, ca. alle 60 min neu erstellt. Der Wert, den  $S_{\text{bgr\_drift}}$  annimmt, ist üblicherweise klein, da die Luftaufnahmen zeitlich nahe an den Dunkelbildern erstellt werden. Die Auswirkungen der Driftkorrektur auf das Rohsignal sind immer  $< 1,25\%$  (berechnet aus dem Signal in der Flachflamme bei  $\phi = 1,0$ ).

Einmalig für jeden Messtag wird der laserenergieabhängige Korrekturfaktor  $F_{\text{add\_dark}}$  bestimmt. Damit wird das Signal auf Streulicht des Lasers korrigiert, das durch vielfache Reflexion auf alle Raman-Kanäle gelangt. Die Annahme ist, dass das Störsignal gleichmäßig auf alle Raman-Kanäle trifft.  $F_{\text{add\_dark}}$  wird durch eine 2-Punkt-Interpolation des Signals aus dem Hintergrundkanal BG3 bestimmt. Hierzu werden Luftaufnahmen verwendet, bei welchen die Laserschussenergie einmal 100 % und einmal 50 % des Nominalwertes (ca. 1,6 J/Schuss) beträgt. Die Laserenergie schwankt über einen Messtag im Bereich von bis zu 10 %.  $F_{\text{add\_dark}} \cdot E_{\text{Laser}}$  ändert das Rohsignal üblicherweise um maximal 0,5 %.

Durch Fluktuationen der Laserenergie in den einzelnen Laserschüssen variierte die Signalintensität des Streulichts. Die Energie des Nd:YAG-Laser zur Anregung der Raman-

und Rayleigh-Streuung wurde deshalb über einen Energiemesskopf (Rauschen ca. 0,01 % bei 800 mJ) mitgeschrieben und jedes Einzelbild um die instantane Laserschussenergie korrigiert.

### Wavelet denoising (hochaufgelöste Raman-Daten)

Für die räumlich hochaufgelösten Messdaten, die mit der kombinierten Raman-/Rayleigh-Messtechnik aufgenommen wurden (vgl. Kap. 4.3), wurden die Bilddaten vor Eingabe in die MI mit dem *Wavelet Adaptive Thresholding Algorithm* (WATR) entrauscht [23]. Hintergründe der Methode sind in [59, 102] zu finden und werden hier nur sehr kurz erläutert. Die Bilddaten (Raman, Rayleigh und CO-LIF) werden mit höherer räumlicher Diskretisierung (ca. 20  $\mu\text{m}$ ) aufgenommen als durch das Detektionssystem möglich (optische Auflösungsgrenze ca. 60  $\mu\text{m}$ ). Da damit wenig Signal auf jeden Pixel trifft, sind die Bilddaten stark verrauscht. Das Ziel des WATR ist, das Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SNR) zu maximieren, während gleichzeitig die größtmögliche optische Auflösung des Systems ausgenutzt wird. Das heißt, die Bilddaten werden entrauscht, während nur eine sehr geringe räumliche Glättung stattfindet. Die Gradienten bleiben weitestgehend erhalten. Die Eingangsgrößen für den Entrauschalgorithmus sind kameraspezifische Parameter: die Umwandlungsrate der eintreffenden Photonen zu Signalcounts (engl. *gain*) und die Charakteristik des Dunkelstromrauschens. In dieser Arbeit wurden die Messdaten mit demselben System wie in [98] akquiriert und daher die identischen Parameter zum Entrauschen der Bilddaten verwendet.

### Selektion fehlerhafter Bilder

Die Rohbilder werden auf einzelne helle Pixel (engl. *hot pixel*), die eine sehr hohe Signalintensität aufweisen, durchsucht. Diese hohen Countwerte werden durch kosmische Strahlung ausgelöst. Der Suchalgorithmus basiert auf der räumlichen Ausdehnung der hohen Signalwerte, die anders als durch Flammenphänomene hier auf einen einzigen Pixel limitiert ist. Die so kontaminierten Bilder (< 1 %) werden diskriminiert und nicht für die Auswertung herangezogen.

Die Bilder der Rayleigh-Kamera können bei Aufnahme an Positionen, die weit von der Brennerachse entfernt liegen, Mie-Streuung des Lasers an Staubpartikeln enthalten. Diese Bilder müssen ebenfalls aussortiert werden. Dies geschieht über einen Algorithmus, der die Anzahl der lokalen Maxima in jedem Bildabschnitt zählt, deren Abstände vergleicht und anhand vordefinierter Schwellwerte die betroffenen Bilder verwirft.

Zusätzlich werden Bilder, bei welchen der Mittelwert des Signals auf dem Hintergrundkanal BG3 oder die Laserenergie mehr als 5 Standardabweichungen vom Mittelwert der Bilderserie variieren, als fehlerhaft markiert und verworfen.

### 3.4.3 Vorgehen zur Kalibration und damit erreichbare Messgenauigkeit

Im folgenden Unterkapitel wird das Vorgehen zur Kalibration des Raman-/Rayleigh-Messsystems beschrieben. Die Kalibration hat zum Ziel, die Multiplikatoren (Vorfaktoren von  $c_{ij}$  in Gl. 3.18) der Antwort- und Übersprechfunktionen anhand von Gemischen mit bekanntem thermochemischen Zustand (Zusammensetzung und Temperatur) einzustellen.

Dabei werden Gasströmungen mit zunehmend ähnlicher Zusammensetzung des erwarteten Gemischs in der Zielflamme vermessen: Kaltgase bei Raumtemperatur, Abgase von einfachen Flammen und abschließend durch eine laminare Flammenfront hindurch. Die für jeden Messtag wiederholte Kalibration wird bezüglich ihrer Schwankungen beurteilt. Das Vorgehen zur Nachkalibration während der Messung in einer Zielflamme wird besprochen. Im Anschluss wird die Akkuratheit und Präzision, die mit dem Messsystem erreichbar ist, gezeigt.

### Normalisierung

Der erste Schritt vor Beginn der eigentlichen Kalibration war die Normalisierung der ausgegebenen Spezieskonzentrationen. Dabei wurde ein räumlich homogenes Gemisch im Probevolumen vermessen. Da entlang des 6 mm langen Probevolumens die gleiche Konzentration und die gleiche Temperatur vorliegt, müssen auch die berechneten Konzentrationen und die Temperatur gleich sein. Die berechneten Profile wurden mittels der Normalisierungstabelle „glatt gezogen“. Diese Tabelle enthielt für jeden räumlichen Diskretisierungsschritt einen Faktor, mit dem das Signal multipliziert wurde. Gleiches wurde für die Bilddaten der Rayleigh-Kamera zur Temperaturberechnung durchgeführt.

Verursacht wurde der gekrümmte Verlauf der Spezieskonzentrationen und der Temperatur durch ein geringfügig schwächeres Signal aus den äußeren Bereichen des Probevolumens sowie Abschattungen und schlechtere Transmission der durchlaufenen Optiken für Streulicht, das von dort emittiert wurde. Die Normalisierung wurde für jeden Raman-Kanal und das Rayleigh-Bild durchgeführt. Dazu wurde ein Reingas oder (verbranntes) Gemisch vermessen, in dem die entsprechenden Spezies in hoher Konzentration vorlag.

### Kalibration durch Kaltgase bekannter Zusammensetzung

Zur Kalibration der Multiplikatoren (Vorfaktoren von  $c_{ij}$  in Gl. 3.18) wurde zuerst trockene Luft vermessen. Eingestellt wurden hier die Multiplikatoren von  $N_2$  sowie  $O_2$  und  $O_2 \ll CO_2$  relativ zu  $N_2$  über die bekannte Zusammensetzung der Laborluft. Die lokale Gastemperatur (um  $T = 293\text{ K}$ ) im Probevolumen wurde über ein Thermoelement ausgelesen. Die Kalibrationsfaktoren für das Rayleigh- und Raman-Signal wurden als Rayleigh-Gain bzw. YAG-Gain bezeichnet (engl. Verstärkungsfaktor). Diese wurden verwendet, um die Temperaturen  $T_{pg}$  und  $T_{Ray}$  (berechnet aus dem Raman- bzw. Rayleigh-Signal) auf die gemessene Temperatur einzustellen. Dazu wurde das Raman- und Rayleigh-Signal mit YAG-Gain sowie zusätzlich das Rayleighsignal mit dem Rayleigh-Gain multipliziert.

**Tabelle 3.3:** Zusammensetzung der verwendeten Gasgemische für die Kalibration des Messsystems.

Kalibrationsgas	Zusammensetzung ( Vol-% )
Trockene Luft ( $N_2/O_2/Ar/CO_2$ )	78,08/20,95/0,93/0,0397 (= 397 ppm)
$CH_4/N_2$	20,00/80,00
$CO_2/N_2$	20,00/80,00
$CO/H_2/N_2$	1,99/35,00/63,00

Im nächsten Schritt wurden die Reingase  $CH_4$  und  $H_2$  vermessen. Hier wurden die Multiplikatoren  $CH_4$  und  $H_2$  sowie das Übersprechen von  $X \ll CH_4$  bzw.  $X \ll H_2$  festgesetzt.  $X$  steht dabei für alle möglichen Spezies, für die entsprechende Einträge in der Matrix  $c$  (vgl.

Gl. 3.18) existieren. Zusätzlich wurden weitere Gasgemische bekannter Zusammensetzung (vgl. Tab. 3.3) als Kalibrationsgase mit dem gleichen Vorgehen vermessen.

### Kalibration in der Flachflamme

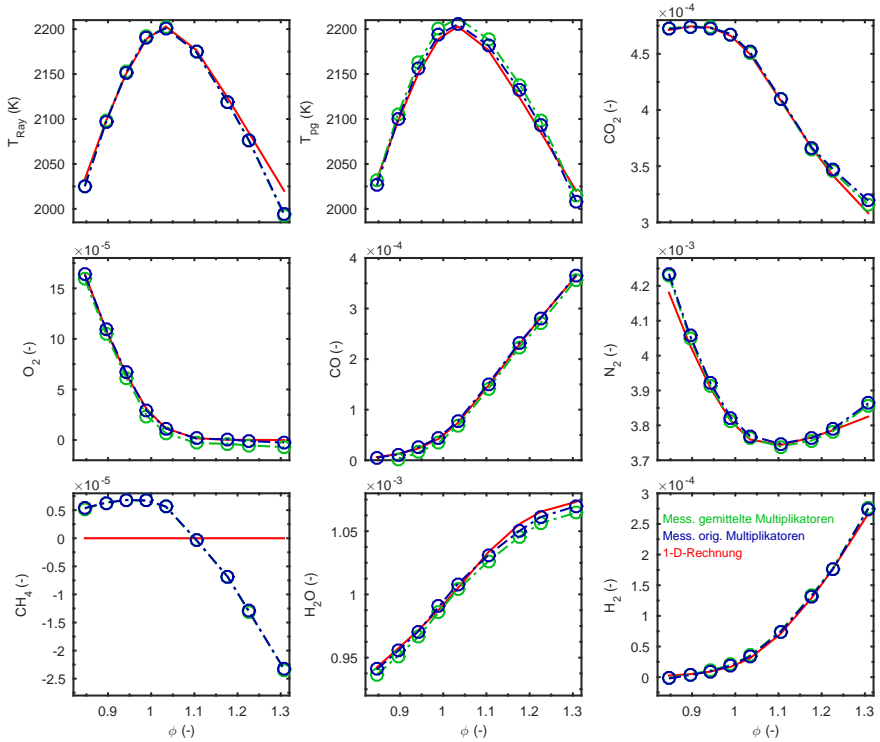
Nachdem in den Kaltgasen bei Temperaturen nahe  $T = 300\text{ K}$  kalibriert wurde, konnten im nächsten Schritt die Multiplikatoren bei hohen Temperaturen, wie sie im Abgas einer Methanflamme herrschen, bestimmt werden. Das Ziel dieser Kalibration war es die Raman-Antwort der einzelnen Spezies relativ zu  $\text{N}_2$  auf die numerisch berechneten Werte einzustellen.

Dazu wurde ca. 20 mm oberhalb der vorgemischten Flamme des Flachflammenbrenners (vgl. Abb. 3.7 in Kap. 3.2.1) bei neun verschiedenen Äquivalenzverhältnissen ( $0,85 < \phi < 1,3$ ) gemessen. Für die Kalibration wurde nur das mittlere Drittel des 1-D-Probevolumens (ca. 2 mm Länge) verwendet. So konnte sichergestellt werden, dass einmischende Sekundärluft keinen Einfluss auf die Kalibration hatte. Die Multiplikatoren (Vorfaktoren von  $c_{ij}$  in Gl. 3.18) wurden auf die tatsächlich vorliegenden Konzentrationen angepasst. Als Zielgrößen dienten Gleichgewichtskonzentrationen aus der Berechnung einer frei propagierenden Flamme (Cantera, GRI 3.0). Dabei wurden die im Vergleich zur ungestörten numerischen Rechnung niedrigeren Gleichgewichtstemperaturen über dem Brenner (ca.  $-40\text{ K}$  bei  $\phi > 1$ ) [60], die durch Strahlungsverluste verursacht werden [32, 49], berücksichtigt. Dies geschah, indem die berechneten Gleichgewichtstemperaturen um  $40\text{ K}$  reduziert und fixiert wurden. Mit diesen Zieltemperaturen wurden dann die Gleichgewichtskonzentrationen der Spezies erneut berechnet. Die wichtigsten in der Flachflamme eingestellten Multiplikatoren für Antwort- und Übersprechfunktionen waren:  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{O}_2 \ll \text{CO}_2$ ,  $\text{N}_2 \ll \text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{N}_2 \ll \text{CO}$ ,  $\text{CO} \ll \text{N}_2$ .

Das Äquivalenzverhältnis des Brennstoff-Luft-Gemisches wurde über dem Brenner mit der Raman-/Rayleigh-Messtechnik auch vor dem Entzünden der Flamme vermessen. Dies ermöglichte es, das exakte  $\phi$  aus dem Verhältnis von  $\text{N}_2$  zu  $\text{CH}_4$  in der kalten Strömung zu bestimmen. Mit diesem gemessenen Äquivalenzverhältnis wurde dann die erwartete Gleichgewichtskonzentration numerisch berechnet. Mögliche Fehler in der Wiederholgenauigkeit beim Öffnen der Volumenstromregler für Luft und Methan konnten kompensiert werden, indem zunächst im nicht entzündeten Gas gemessen wurde. Unmittelbar danach wurden die Gase entzündet und im reagierten Abgas der Flamme gemessen. So konnte das Äquivalenzverhältnis im Kalten und Heißen zuverlässig konstant gehalten werden.

Die Kalibration des  $\text{CH}_4$ -Multiplikators im Kaltgas musste mitunter angepasst werden, falls der Verlauf der  $T_{\text{Ray}}$  (vgl. Abb. 3.25 oben links) gegen die theoretischen Werte in Richtung höherer oder niedriger  $\phi$  verschoben war. Die Übereinstimmung der Temperaturen zwischen Messung und Berechnung symmetrisch um die Lage der Maximaltemperatur (bei  $\phi \approx 1,06$ ) wurde als wichtigstes Kriterium für die Einstellung des  $\text{CH}_4$ -Multiplikators angesehen. Dazu musste der  $\text{CH}_4$ -Multiplikator manuell um max.  $\pm 1\%$  manipuliert werden. Anschließend erfolgte die Anpassung der Magnitude der  $T_{\text{Ray}}$  und  $T_{\text{pg}}$  über Rayleigh-Gain und YAG-Gain. Die folgende Manipulation der Multiplikatoren der Antwort- und Übersprechfunktionen wurde automatisiert durchgeführt: Für alle neun gemessenen Äquivalenzverhältnisse wurden die Differenzen der Spezieskonzentrationen zu den Sollwerten der 1-D-Rechnung nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate optimiert.

Das Ergebnis der Kalibration mit der Flachflamme ist in Abb. 3.25 anhand der Hauptspezieskonzentrationen und der Temperatur gezeigt. Zur Beschleunigung der automatischen Optimierung der Multiplikatoren wurden alle 100 Bilder für jedes Äquivalenzverhältnis vor



**Abbildung 3.25:** Temperaturen und Spezieskonzentrationen in mol/l nach Abschluss der Kalibration im Flachflammenbrenner. Messwerte (Mess.) nach Anpassung der Multiplikatoren für Antwort- und Übersprechfunktionen (blau) auf die 1-D-Rechnung (rot). Die grün dargestellten Messdaten wurden mit den Multiplikatoren ausgewertet, die über alle vier Messtage gemittelt wurden. In blau sind die Messwerte dargestellt, die mit den ursprünglichen, nur für diesen Messtag optimierten (orig.) Multiplikatoren erzeugt wurden.

Eingang in die Routine gemittelt. Daher sind keine Fehlerbalken gezeigt. Auf die Präzision der Messung wird unten eingegangen.

Um die Vergleichbarkeit der Ergebnisse an den einzelnen Messtagen zu gewährleisten, wurden die Multiplikatoren der Antwort- und Übersprechfunktionen für alle vier Messtage (bezogen auf die Messung der Konfigurationen MHF 5-8, vgl. Kap. 4.2) gemittelt. Hierauf wird weiter unten näher eingegangen. Die Messwerte in der Flachflamme in Abb. 3.25 wurden sowohl mit dem gemittelten Satz der Multiplikatoren ausgewertet (grün) als auch mit den Multiplikatoren, die ausschließlich für diesen Messtag optimiert wurden (blau). Die Abweichungen der Ergebniskonzentrationen ( $C$ ) zwischen den beiden Sätzen an Multiplikatoren sind klein:  $\Delta T_{Ray} < 0,1\%$ ,  $\Delta T_{pg} < 0,3\%$ ,  $\Delta C_{CO_2} < 1\%$ ,  $\Delta C_{N_2} < 0,2\%$ ,  $\Delta C_{H_2O} < 0,5\%$ ;  $\Delta C_{O_2, \phi=0,7} < 2,5\%$ . Bei größeren  $\phi$  wird  $\Delta C_{O_2}$ , relativ auf den Messwert bezogen, der nahe null ist, sehr groß. Da hauptsächlich  $C_{CO_2}$  und  $C_{O_2}$  sensitiv auf die Multiplikatoren erscheinen, wurde während der Messung wiederholt der Multiplika-



tor für  $O_2$  sowie  $CO_2 \ll O_2$  nachgestellt, siehe unten. Gleiches gilt für YAG-Gain und Rayleigh-Gain.

Wie in Abb. 3.25 zu sehen ist, konnten bis auf  $CH_4$  alle Spezies durch Anpassung der Multiplikatoren sehr gut zur Übereinstimmung mit der 1-D-Rechnung gebracht werden. Ursächlich für die Abweichung bei  $CH_4$  waren die gewählten Polynomfunktionen für das Übersprechen auf dem  $CH_4$ -Kanal, die nicht perfekt sind.

Dem Multiplikator für  $N_2 \ll H_2O$  fällt eine besondere Rolle zu. Spektral ist das Übersprechen von  $H_2O$  auf  $N_2$  extrem gering. Der Multiplikator wurde dazu verwendet, auf Luminosität in der Flamme zu korrigieren. Dies war in der Flachflamme mit  $N_2 \ll BG3$  nicht zufriedenstellend möglich. Das Vorgehen hat sich als pragmatische Methode erwiesen, da in den Zielflammen eine ähnliche spektrale Luminosität existiert wie in der Flachflamme.

In der brennstoffreichsten Konfiguration der Flachflamme ( $\phi = 1,3$ ) wurde der Verstärkungsfaktor für das CO-LIF-Signal (CO-LIF-Gain) kalibriert. Hier war die CO-Konzentration am höchsten (vgl. Abb. 3.25 Mitte).

### Kalibration in der Hencken-Flamme

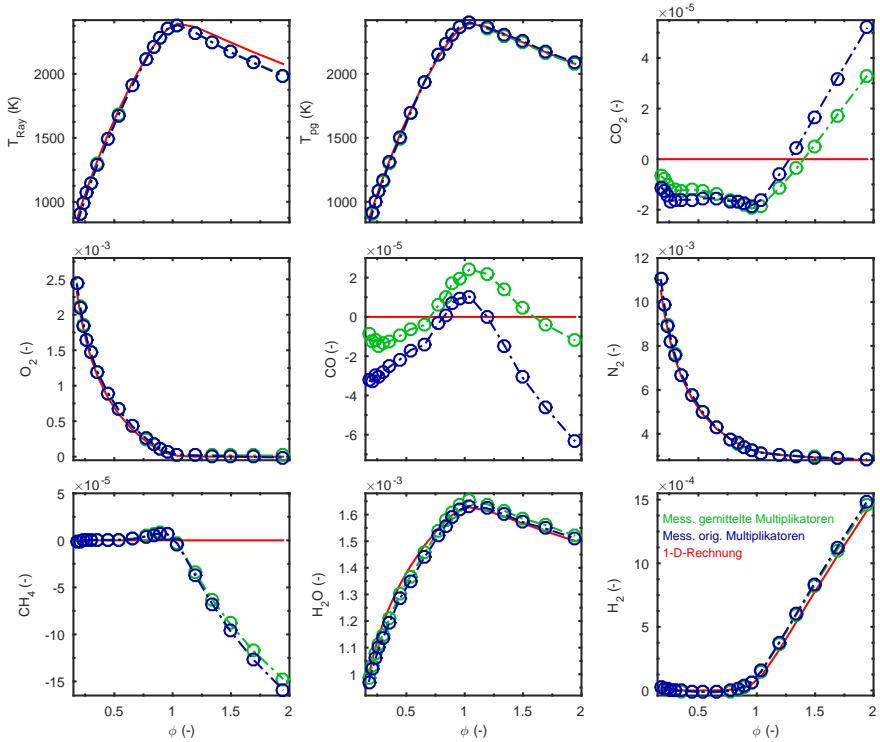
Zur Kalibration der Übersprechfunktionen auf C-haltige Spezies wurde im Abgas des Hencken-Brenners (vgl. Abb. 3.8 in Kap. 3.2.1) gemessen. Da dieser ausschließlich mit  $H_2$  als Brennstoff betrieben wurde, war die Konzentration der C-haltigen Spezies definitiv bei null. Durch die weiten Brennbarkeitsgrenzen von  $H_2$  konnte bis zu niedrigen Flammentemperaturen von ca. 860 K bei  $\phi = 0,18$  kalibriert werden. Konkret wurden die Multiplikatoren folgender Übersprechfunktionen angepasst:  $CO_2 \ll H_2$ ,  $CO_2 \ll H_2O$ ,  $CO \ll H_2$ ,  $CO \ll H_2O$ ,  $O_2 \ll H_2$ ,  $H_2O \ll H_2$ ,  $H_2 \ll H_2O$ ,  $CH_4 \ll H_2O$ ,  $CH_4 \ll H_2$ .

Das automatisierte Vorgehen zur Anpassung der Multiplikatoren erfolgte wie bei der Kalibration in der Flachflamme nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate. Die Anzahl der gemessenen Äquivalenzverhältnisse betrug 19 und erstreckte sich zwischen  $\phi = 0,18$  und  $\phi = 1,95$ .

In Abb. 3.26 ist das Ergebnis der Kalibration anhand der Hauptspezieskonzentrationen und der Temperatur gezeigt. Zur Beschleunigung der automatischen Bestimmung der Multiplikatoren wurden alle 100 Bilder für jedes Äquivalenzverhältnis vor Eingang in die Routine gemittelt. Daher sind keine Fehlerbalken gezeigt. Auf die Präzision der Messung wird unten eingegangen.

Wie bei der Kalibration in der Flachflamme (vgl. Abb. 3.25) sind auch für den Hencken-Brenner (Abb. 3.26) die Messwerte sowohl mit dem gemittelten Satz der Multiplikatoren (grün) als auch mit den Multiplikatoren, die ausschließlich für diesen Messtag optimiert wurden (blau), ausgewertet. Größere Abweichungen treten hier bei CO und  $CO_2$  auf, die von den unterschiedlichen Multiplikatoren für  $CO \ll H_2$  und  $CO_2 \ll H_2$  herrühren. Aufgrund der Konzentrationen von null der beiden Spezies (CO und  $CO_2$ ) ist die Auswirkung eines veränderten Multiplikators hier groß. Durch die Mittelung der Multiplikatoren über alle Messtage und die Verwendung der Flachflamme als zusätzliche Kalibrationsflamme kann der beste Kompromiss für die Auswahl der Multiplikatoren gefunden werden.

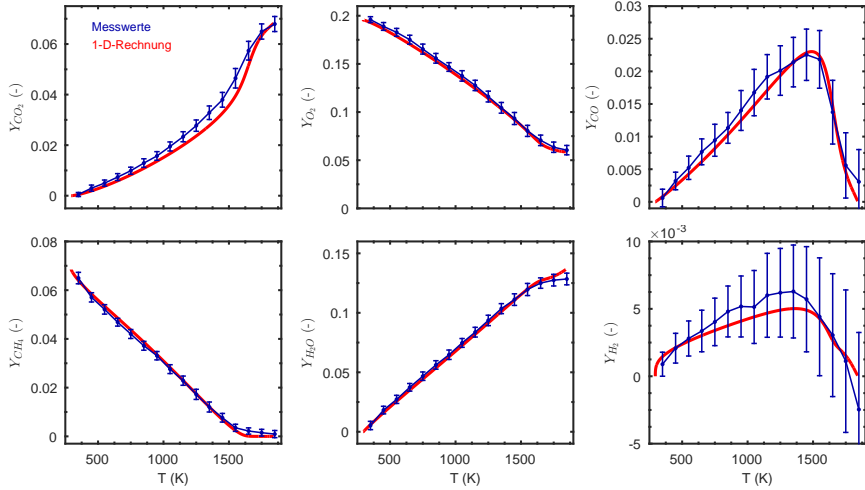
Wie in Abb. 3.26 zu sehen ist, konnten die Übersprechfunktionen auf  $CO_2$ , CO und  $CH_4$  nicht perfekt zu null korrigiert werden. Dies galt auch für die Multiplikatoren, die ausschließlich für diesen Messtag optimiert wurden, und liegt an den nicht perfekten Polynomfunktionen für die entsprechenden Übersprechfunktionen.



**Abbildung 3.26:** Temperaturen und Spezieskonzentrationen in mol/l ach Abschluss der Kalibration im Hencken-Brenner. Messwerte (Mess.) nach Anpassung der Multiplikatoren für Antwort- und Übersprechfunktionen (blau) auf die 1-D-Rechnung (rot). Die grün dargestellten Messdaten wurden mit den Multiplikatoren ausgewertet, die über alle vier Messtage gemittelt wurden. In blau sind die Messwerte dargestellt, die mit den ursprünglichen, nur für diesen Messtage optimierten (orig.) Multiplikatoren erzeugt wurden.

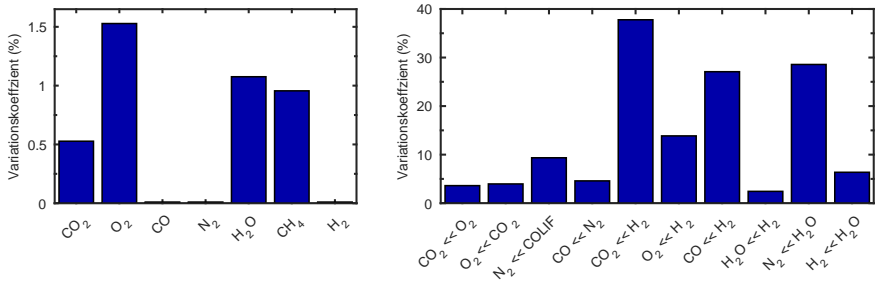
### Kalibration in der vertikalen Flamme

Mittels der ebenen, ungestreckten Flamme über dem vertikalen Flammenbrenner (vgl. Abb. 3.6 in Kap. 3.2.1) wurden anschließend die Multiplikatoren für die Übersprechfunktionen überprüft. Das Äquivalenzverhältnis betrug  $\phi = 0,72$ . Brennstoff war Methan. Da hier durch eine Flammenfront hindurch gemessen wurde, konnten auch bei mittleren Temperaturen ( $500 \text{ K} < T < 1700 \text{ K}$ ) die Multiplikatoren eingestellt werden. Eine Manipulation war hier nur in geringem Umfang für  $\text{H}_2 \ll \text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CO} \ll \text{H}_2$ ,  $\text{CH}_4 \ll \text{H}_2$  und  $\text{CH}_4 \ll \text{BG3}$  notwendig. Die Sollwerte wurden hier ebenfalls aus einer 1-D-Rechnung (frei propagierende Flamme) gewonnen. In Abb. 3.27 ist das Ergebnis der Kalibration anhand der Messungen in der vertikalen Flamme überprüft. Die Massenbrüche der Spezies stimmen auch im mittleren Temperaturbereich hervorragend mit der 1-D-Rechnung überein. Lediglich bei  $Y_{\text{CO}_2}$  sind die Messwerte im Bereich um  $T = 1500 \text{ K}$  zu geringfügig höheren Werten als in der 1-D-Rechnung verschoben.



**Abbildung 3.27:** Massenbrüche der Hauptspezies im Temperatur-Zustandsraum nach Abschluss der Kalibration in der V-Flamme ( $\phi = 0,72$ ). Messwerte nach vorheriger Optimierung der Multiplikatoren für Antwort- und Übersprechfunktionen in der Flachflamme und der Hencken-Flamme.

### Variation des Ergebnisses der Kalibration über einzelne Messtage hinweg



**Abbildung 3.28:** Variationskoeffizient (Standardabweichung/Mittelwert  $\cdot 100\%$ ) der Multiplikatoren der Antwort- (links) und Übersprechfunktionen (rechts). Basis sind die vier Messtage der Messungen der Konfigurationen MHF 5-8 (vgl. Kap. 4.2). Die Multiplikatoren der Übersprechfunktionen (rechts), bei welchen der Variationskoeffizient  $< 0,05\%$  war, sind nicht gezeigt.

Wie in der vorhergehenden Abschnitten beschrieben, wurde bei der täglich durchgeführten Kalibration und der anschließenden automatischen Optimierung der Multiplikatoren für die Antwort- und Übersprechfunktionen nicht das identische Ergebnis erzielt. Als Ursache dafür werden die geringfügige Veränderung des Laserstrahlprofils und der thermisch bedingten Verschiebung der optischen Elemente auf der Detektionsseite vermutet. In Abb. 3.28 ist der Variationskoeffizient (Standardabweichung/Mittelwert  $\cdot 100\%$ ) für die Multiplikatoren aller Antwortfunktionen und ausgewählter Übersprechfunktionen gezeigt. Als

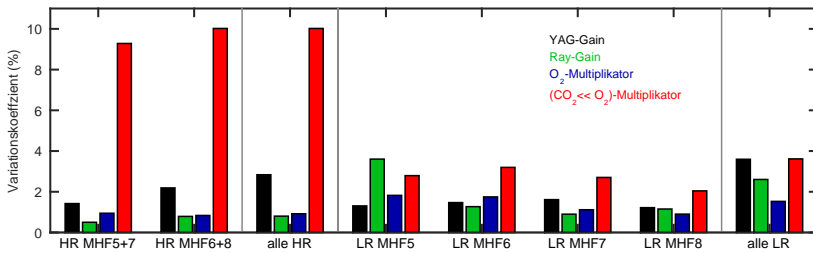
Basis dienen alle vier Messtage der Messung der Konfigurationen MHF 5-8 (vgl. Kap. 4.2).

Diese Variationen der Multiplikatoren werden als normal angesehen und sind dem Messsystem inhärent. Um die Ergebnisse der Messungen in den Zielflammern vergleichen zu können, wurden alle Messdaten in den Zielflammern mit dem identischen Satz an Multiplikatoren durchgeführt. Diese Multiplikatoren wurden durch Mittelung aus allen Einzelkalibrationen gewonnen. Ausnahmen gelten für den Multiplikator von  $O_2$  und  $CO_2 \ll O_2$ , die mit geringem Aufwand während kurzer Unterbrechungen bei den Messungen in den Zielflammern neu erstellt werden konnten, siehe nächster Abschnitt.

### Wiederholte Kalibration während der Messung und deren Auswirkung

Die oben beschriebene Kalibration mit Kaltgasen, Flachflamme, Hecken-Brenner und vertikaler Flamme findet vor Beginn der Messung der Zielflamme statt. Auch während der Messung der Zielflamme wurde die Datenaufnahme wiederholt unterbrochen, um nach ca. 60 min Messzeit eine erneute Kalibration durchführen zu können. Dadurch konnten Drifts in der Anlage korrigiert werden, die durch verschiedene Einflüsse entstehen. Dazu gehören: die Wärmestrahlung der Flamme, die auf die Optiken der Detektionsseite trifft, und ein verändertes Strahlprofil des Lasers.

Zur erneuten Kalibration wurde in Luft und, bei den hochaufgelösten (HR) Daten, in der Flachflamme erneut kalibriert. Neu eingestellt wurden bei der Luftmessung folgende Parameter: YAG-Gain, Rayleigh-Gain,  $O_2$ -Multiplikator, ( $CO_2 \ll O_2$ )-Multiplikator und der Drift des Hintergrunds  $S_{bgr\_drift}$  (vgl. Kap. 3.4.2). Eine Beschränkung auf Anpassung dieser Parameter beruht auf Erfahrungswerten: ein Kompromiss aus zu erwartender Verbesserung der Messwerte und Zeitaufwand für die Durchführung der Kalibration. In Abb. 3.29 ist der Variationskoeffizient (Standardabweichung/Mittelwert  $\cdot 100\%$ ) der Parameter über einen Messtag und zwischen allen Messtagen für die MHF-Flammen gezeigt.



**Abbildung 3.29:** Variationskoeffizient (Standardabweichung/Mittelwert  $\cdot 100\%$ ) der driftenden Parameter YAG-Gain, Rayleigh-Gain,  $O_2$ -Multiplikator und ( $CO_2 \ll O_2$ )-Multiplikator an einzelnen Messtagen und zum Vergleich über alle Messtage für die hochaufgelösten (HR) und die niedrigaufgelösten (LR) Daten (weitere Multiplikatoren, vgl. Abb. 3.28). Die Anzahl der einbezogenen Messungen für die HR-Daten sind 6 Luftmessungen, für LR-Daten 14 Luftmessungen.

Die Parameter beeinflussen alle Ergebnisse, d. h. Spezieskonzentrationen und Temperatur. Eine Veränderung des YAG-Gains und Rayleigh-Gains wirkt sich direkt auf  $T_{pg}$  und  $T_{Ray}$  aus. Eine Erhöhung des  $O_2$ -Multiplikators erhöht unmittelbar die berechnete  $O_2$ -Konzentration und verringert die  $CO_2$ -Konzentration. Eine Erhöhung des ( $CO_2 \ll O_2$ )-Multiplikators verringert direkt die berechnete  $CO_2$ -Konzentration. In Tab. 3.4 sind typi-

sche Veränderungen der driftenden Parameter über einen Messtag (eine Standardabweichung um den Mittelwert) und deren Auswirkung auf die relevante Messgröße aufgetragen.

**Tabelle 3.4:** Exemplarische Größen des Drifts von YAG-Gain, Rayleigh-Gain,  $O_2$ -Multiplikator,  $(CO_2 \ll O_2)$ -Multiplikator und Hintergrund und deren Auswirkung auf das Messergebnis. Die Variation beträgt eine Standardabweichung um den Mittelwert des entsprechenden Parameters innerhalb eines repräsentativen Messtags.

Driftender Parameter	Veränderung des Parameters	Auswirkung auf das Ergebnis
Yag-Gain	+1,6 %	$T_{pg}$ : +1,6 %
Ray-Gain	+3,6 %	$T_{Ray}$ : +3,6 %
$O_2$ -Multiplikator	+1,8 %	Konzentrationen: $O_2$ : +1,3 % / $CO_2$ : -34,1 %
$(CO_2 \ll O_2)$ -Multiplikator	+2,8 %	Konzentrationen: $O_2$ : $\pm 0$ % / $CO_2$ : -52,8 %
Drift des Hintergrunds	min $\rightarrow$ max	$T_{pg}$ : $< \pm 1,5$ %

Die große Variation des Multiplikators  $CO_2 \ll O_2$  (bis zu 10 % über einen Messtag, vgl. Abb. 3.29) besonders in den HR-Daten wird durch zwei Aspekte relativiert: 1. Der Absolutwert von  $CO_2$  in Luft liegt mit ca. 400 ppm sehr nahe bei null. Dadurch werden prozentual betrachtete Änderungen sehr groß. 2. Der  $O_2$ -Multiplikator sinkt, wenn der Multiplikator  $CO_2 \ll O_2$  steigt. Die Multiplikatoren von  $O_2$  und  $CO_2 \ll O_2$  ändern sich immer gemeinsam, weil die Raman-Spektren von  $O_2$  und  $CO_2$  ineinanderlaufen (vgl. Abb. 3.21). Daher bewirken kleine Positions- oder Größenänderungen in der Abbildung eine große Signalveränderung in den benachbarten Kanälen.

Ein geeigneterer Kalibrierfall für  $O_2$  und  $CO_2 \ll O_2$  wäre die Flachflamme. Die Messung daran scheint aber verzichtbar. Sie kann die Messgenauigkeit, gemessen am Zeitaufwand für die Durchführung, nicht erheblich verbessern. Bei Aufnahme der HR-Daten musste wiederholt die Flachflamme verwendet werden, um den CO-Gain und die OH-PLIF-Normierung zu erstellen. Daher kann bei diesen Daten die Auswirkung der Veränderung des  $(CO_2 \ll O_2)$ -Multiplikators exemplarisch abgeschätzt werden: Bei der extremen Veränderung des  $(CO_2 \ll O_2)$ -Multiplikators um +15 % ändert sich der  $CO_2$ -Molenbruch in der brennstoffreichsten Konfiguration der Flachflamme ( $\phi = 1,3$ ) um -3,7 %.

Der Drift des Hintergrundes (vgl. Kap. 3.4.2) ist nicht in Abb. 3.29 aufgeführt, da der Zahlenwert um null schwankt. Eine relative Betrachtung liefert so Variationskoeffizienten der Größenordnung 1000 %. Stattdessen ist der Einfluss des Hintergrunddrifts im schlechtesten Fall (vgl. Tab. 3.4) als Vergleich zwischen minimalem und maximalem Wert innerhalb eines Messtags betrachtet. Die Veränderung von  $T_{pg}$  ist immer  $< 1,5$  % und hauptsächlich relevant für die HR-Daten mit relativ höherem Hintergrundrauschen. Die Auswirkung von typischen Drifts über einen Messtag auf das Messergebnis sind in Tab. 3.4 gezeigt.

Die Fehler auf das Messergebnis durch diese Drifts limitieren die Größenordnung der erreichbaren Akkuratheit (s. u. in Tab. 3.5). Die Bewertung der Fehler, die sich teilweise gegenseitig aufheben und voneinander abhängig sind, erscheint nach den Gesetzen der Fehlerfortpflanzung nicht trivial. Die Anzahl der Kalibrationen über einen Messtag ist damit immer eine Abwägung von Zeitaufwand zur Nachkalibration und Verbesserung der erreichbaren Messgenauigkeit.

Fazit:

Die Parameter YAG-Gain, Rayleigh-Gain, O<sub>2</sub>-Multiplikator und Drift des Hintergrunds verändern sich innerhalb eines Messtages um < 4 %. Der (CO<sub>2</sub> ≪ O<sub>2</sub>)-Multiplikator ändert sich um weniger als 10 %. In den Messungen zu dieser Arbeit wurden daher als Kopromiss diese Parameter ca. alle 60 min neu kalibriert, alle anderen Multiplikatoren einmal pro Messtag. Wenn die Messzeit sehr lange ist (> 8 h) und ein Drift der Anlage z. B. durch große thermische Last erwartet wird, ist eine häufigere Kalibration mittels Flachflamme sinnvoll.

### Interpolation der driftenden Parameter

Bei Aufnahme der LR-Daten (vgl. Kap. 4.2) wurde in jeder axialen Höhe  $z$  über dem Brenner die Flamme sukzessive von kleinen zu großen Radien  $r$  abgerastert (vgl. Abb. 3.4 in Kap. 3.2.1).

Unmittelbar vor der Messung des ersten radialen Punktes wurde in Luft kalibriert. Die Messpunkte wurden bei einer radialen Position von  $r = 0$  mm begonnen und bis zu hohen Radien weit in den einhüllenden Luftstrom (*coflow*) gelegt. Die Zeitspanne für die Messung von  $r = 0$  mm bis zur äußersten radialen Position betrug je nach axialer Position bis zu 60 min. Der zeitliche Ablauf der Messung ermöglichte eine weitere Driftkorrektur für folgende Parameter:

- YAG-Gain,
- Rayleigh-Gain,
- O<sub>2</sub>-Multiplikator,
- (CO<sub>2</sub> ≪ O<sub>2</sub>)-Multiplikator,
- Drift des Hintergrunds,
- Normalisierung der Rayleigh-Bildes,
- Normalisierung der Raman-Kanäle O<sub>2</sub> und N<sub>2</sub>.

Zwischen den Luftmessungen (vor und nach Messung in einer axialen Ebene in der Flamme) wurden die o. g. Parameter linear interpoliert. So existierte bei der Datenauswertung für jede räumliche Messposition ein eigener Satz dieser Parameter. Die Interpolation erfolgte anhand des Zeitstempels der aufgenommenen Dateien, da von einem zeitlich stationären Drift ausgegangen wurde. Durch die Interpolation der Normalisierung waren die Verläufe von  $T_{\text{Ray}}$ , O<sub>2</sub> und N<sub>2</sub> deutlich glatter und weniger verrauscht (nicht gezeigt).

### Zusammenfassung, Bewertung der Kalibration, erreichbare Akkuratheit und Präzision

In den vorangehenden Abschnitten wurde das Vorgehen zur Kalibration des Raman-/Rayleigh-Messsystems detailliert beschrieben. Dabei wurden die Multiplikatoren der Antwort- und Übersprechfunktionen der einzelnen Spezies anhand von Gasströmungen mit bekanntem thermochemischem Zustand aufeinander angepasst. Durch Ungenauigkeiten in den Polynomfunktionen, die die Antwortfunktionen (CH<sub>4</sub>) und einige Übersprechfunktionen beschreiben, sowie thermisch verursachte Verschiebungen im Aufbau der Detektionsoptiken war das Ergebnis der Kalibration nicht immer identisch. Dies gilt über mehrere Messtage hinweg, aber auch innerhalb eines Messtages. Der Variationskoeffizient (Standardabweichung / Mittelwert · 100 %) betrug für die Gains (YAG- und Rayleigh-Gain) und die Multiplikatoren der Antwortfunktionen gewöhnlich weniger als 3,5 %. Bei einzelnen, weniger wichtigen Übersprechfunktionen konnten deutlich größere Variationen

> 25 % auftreten. Die Fehler durch diese Drifts limitierten die Größenordnung der erreichbaren Akkuratheit.

Um die Vergleichbarkeit der Ergebnisse der Messungen in den Zielflammen zu erhöhen, wurden alle Messdaten in den Zielflammen mit einem identischen Satz an Multiplikatoren durchgeführt, der durch Mittelung aus allen Einzelkalibrationen gewonnen wurde. Ausnahmen gelten für den Multiplikator von  $O_2$  und  $CO_2 \ll O_2$ , die mit geringem Aufwand häufiger (ca. alle 60 min) neu erstellt werden konnten. Die Verwendung der gemittelten Multiplikatoren reduzierte die Akkuratheit des Messsystems. In Tab.3.5 sind typische Werte für Akkuratheit und Präzision der Messtechnik anhand von Messwerten in der Flachflamme gezeigt.

**Tabelle 3.5:** Repräsentative Unsicherheiten der verwendeten Messtechnik zur Bestimmung der Spezieskonzentrationen und der Temperatur. Rahmenbedingung bei der Bestimmung sind drei verschiedene Konfigurationen der Flachflamme.

Messgröße	Präzision, $\sigma$ (%)	Akkuratheit (%)	Flammenbedingungen
T	0,9	2,5	$\phi = 1,01, T = 2191$ K
$N_2$	0,8	2,5	$\phi = 1,01, T = 2191$ K
$CO_2$	3,6	4	$\phi = 1,01, T = 2191$ K
$H_2O$	2,6	3,5	$\phi = 1,01, T = 2191$ K
$\phi$	2,7	4	$\phi = 1,01, T = 2191$ K
CO	8	10	$\phi = 1,27, T = 2004$ K
$H_2$	6	8	$\phi = 1,27, T = 2004$ K
$O_2$	18	4	$\phi = 0,86, T = 2026$ K

### 3.4.4 Auswertung der OH-PLIF-Daten

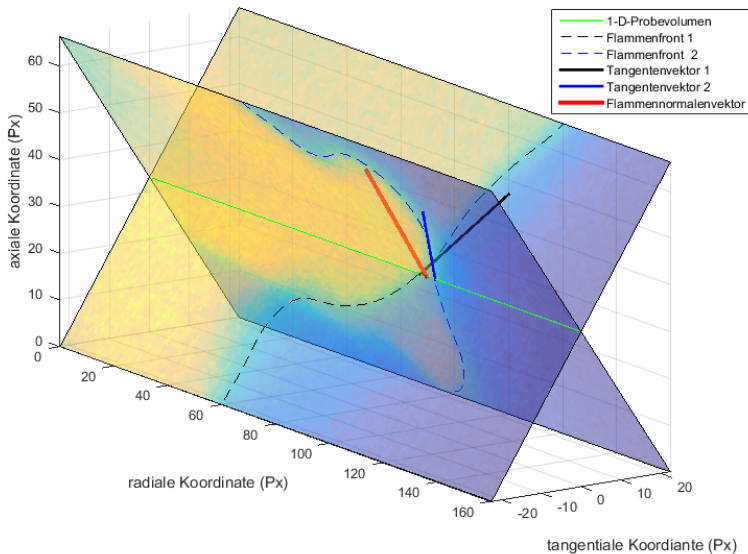
Im folgenden Abschnitt wird die Auswertung der OH-PLIF-Daten (Planare Laserinduzierte Fluoreszenz des OH-Radikals), die simultan zur kombinierten Raman- und Rayleigh-Messtechnik (bei Aufnahme der hochaufgelösten Daten in MHF 5-8, Ergebnisse vgl. Kap. 4.3) durchgeführt wurde, besprochen. Die OH-PLIF-Messtechnik wurde mittels zwei gekreuzter Laserlichtschnitte umgesetzt (Schnittwinkel:  $34^\circ$ , vgl. Kap. 3.2.2). Das Vorgehen der Datenauswertung orientiert sich grundlegend an [42, 43]. Es ist daher an dieser Stelle nur in Grundzügen und in den Details dargelegt, die vom Vorgehen in der Literatur abweichen. Die OH-PLIF-Messtechnik wurde verwendet, um den Flammennormalenvektor zu berechnen. Dieser bezeichnet die dreidimensionale Lage der Flammenfront im Laborkoordinatensystem. Mit seiner Hilfe kann der Flammenöffnungswinkel bestimmt werden. Außerdem kann der räumliche Verlauf der simultan gemessenen Temperaturen und Spezieskonzentrationen (mit kombinierter Raman- und Rayleigh-Messtechnik) so korrigiert werden, als wäre immer senkrecht zur Flammenfront gemessen worden. So werden die Einzelmessungen vergleichbar.

### Konturerkennung und Berechnung des Flammennormalenvektors

Im folgenden Abschnitt wird das schrittweise Vorgehen zur Berechnung des Flammennormalenvektors aus zwei OH-PLIF-Bildern erläutert. In Abb. 3.30 ist das Ergebnis dieser Auswertung anhand zweier Beispielbilder gezeigt.

Vor Eingang der Rohbilder der OH-PLIF-Kameras in den Algorithmus zur Bestimmung der Flammenfronten wurden diese mittels des *Wavelet Adaptive Thresholding Algorithm* (WATR) entrauscht [23]. Das Vorgehen dazu war das gleiche wie für die Raman-/Rayleigh- und CO-LIF-Daten (vgl. Kap. 3.4.2) und wird hier nicht weiter erläutert. Die weitere Vorbearbeitung der Bilddaten umfasste eine Dunkelbildkorrektur durch ein gemitteltetes Dunkelbild (100 Aufnahmen). Außerdem wurde eine zweidimensionale Intensitätskorrektur durchgeführt. Diese war notwendig, um die Bilddaten um das räumlich inhomogene Laserstrahlprofil zu bereinigen. Dazu wurden Aufnahmen in der Flamme des Flachflammenbrenners (vgl. Kap. 3.2.1,  $\phi = 1,3$ ) verwendet, da hier die Konzentration der OH-Radikale im gesamten Bildausschnitt ausreichend hoch und homogen verteilt war.

Zur eigentlichen Kantendetektion wurde ein *Canny-Edge*-Filter [36] verwendet. Die damit markierten Bildbereiche für jedes der zwei Bilder wurden mediangefiltert, mit einem



**Abbildung 3.30:** Bestimmung des Flammennormalenvektors (rot) aus den Bildern der gekreuzten OH-PLIF-Lichtschnitte, exemplarisch dargestellt an einem Ereignis. Die dargestellten Ebenen entsprechen je einem Bild der OH-PLIF-Kameras. Die grüne Linie stellt das 1-D-Probevolumen dar. Die Flammenfronten sind am Übergang des hohen (gelb) zum niedrigen (blau) Signallevel auf den Bilddaten sichtbar. Sie sind mit schwarz bzw. blau gestrichelten Linien markiert. Am Schnittpunkt der Flammenfronten (gestrichelte Linien) mit dem 1-D-Probevolumen (grüne Linie) werden die Tangentenvektoren (schwarz bzw. blau, jeweils in der Ebene der Bilder) erstellt. Der Flammennormalenvektor (rot) entspringt an diesem Schnittpunkt. Er zeigt in Richtung des verbrannten Gemischs.



Schwellwert abgeglichen und anhand dessen in die Bereiche „Edukte“ und „Produkte“ kategorisiert. Die Grenze zwischen diesen beiden Bereichen wurde als „Flammenfront“ bezeichnet.

Die Flammenfront wurde anschließend mit einem Spline-Fit angenähert. Auf Höhe der Schnittlinie der beiden gekreuzten Laserlichtschnitte wurde an der Spline-Kurve der Tangentenvektor ( $t_1$  und  $t_2$ ) der Flammenfront in der Bildebene bestimmt. Der Normalenvektor der Flammenfront ( $n$ ) berechnete sich dann aus dem Kreuzprodukt der beiden Tangentenvektoren:  $n = t_1 \times t_2$ . Die Radialkoordinate  $r$  der Skalarwerte aus der Raman-/Rayleigh-Messung konnte abschließend für jeden Laserschuss auf den Verlauf normal zur Flammenfront ( $r^*$ ) korrigiert werden:  $r^* = r \cdot \cos(\theta)$ .  $\theta$  bezeichnet den Winkel zwischen dem 1-D-Probevolumen und dem Flammennormalenvektor. In Abb. 3.30 ist der gefundene Normalenvektor der Flammenfront ( $n$ ) anhand eines ausgewählten Ereignisses (zwei OH-PLIF-Bilder) dargestellt.

Der Algorithmus zur Kantendetektion arbeitete im Allgemeinen sehr robust. Bei langsamem Anstieg des Signallevels wurden Flammenfronten erkannt, die real nicht existierten. Dies wurde durch den manuell definierten Schwellwert zur Unterscheidung in die verbrannten (Produkte) und unverbrannten Bereiche (Edukte) verursacht. Zur Diskriminierung dieser fälschlicherweise gefundenen Flammenfronten wurde daher, in einem nachgeordneten Schritt, die Magnitude des Gradienten an jeder gefundenen Flammenfronten ausgelesen, mit einem weiteren Schwellwert abgeglichen und das Bild bei Unterschreiten dessen aussortiert. Auch wenn die Flammenfront zu nahe am Rand oder außerhalb des Bildes der OH-PLIF-Kameras lag, waren fehlerhaft detektierte Flammenfronten häufig. Bilder, in welchen die Flammenfronten oder Bruchstücke davon in den äußeren 10 Pixeln (Bildbreite: 160 Pixel) gefunden wurden, wurden deshalb für die Auswertung nicht berücksichtigt. In 15 % der verwendbaren Bilder waren zwei Flammenfronten enthalten – in 13 % drei Flammenfronten pro Bild. Alle anderen verwendbaren Bilder enthielten eine Flammenfront. Wurde mehr als eine Flammenfront in einem Bild gefunden, erfolgte die Zuordnung über das Vorzeichen des Signalgradienten. Dies war nötig, da eine Zuordnung der Flammenfronten auf den beiden OH-PLIF-Bildern nicht direkt über die Pixelposition möglich war. Dies lag an unterschiedlichen Schnittpunkten der gefundenen Flammenfronten mit dem 1-D-Probevolumen (vgl. nächster Abschnitt). Die Anzahl der fälschlicherweise gefundenen Flammenfronten betrug durch alle getroffenen Maßnahmen weniger als ca. 1,5 % aller Flammenfronten.

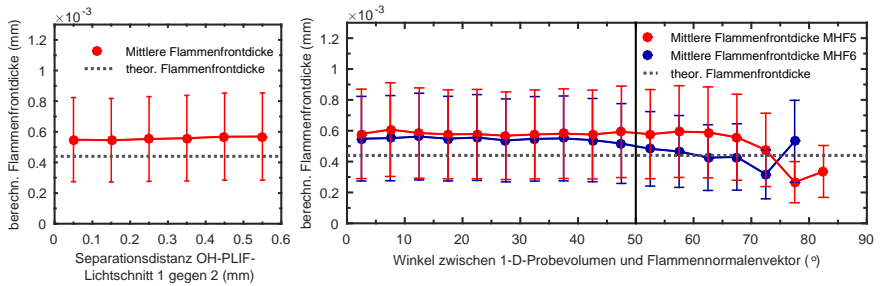
### Validität der gefundenen Flammennormalenvektoren

Für die präzise Berechnung des Flammennormalenvektors bestehen hohe Anforderungen an die Messtechnik. Wie in Kap. 3.2.2 beschrieben, wurden die zwei Laserlichtschnitte aus einem Laserpuls erzeugt. Die zeitliche Trennung der beiden Lichtschnitte erfolgte über Strahlteilung und eine optische Verzögerung: Der Laserpuls für den ersten Laserlichtschnitt ging direkt ins Probevolumen, der zweite durchlief eine Verzögerungsstrecke von einigen Metern. So konnten die beiden Pulse um ca. 20 ns separiert werden. Durch *pointing* des Lasers, thermische Drift der strahlführenden Optiken und *beam steering* des Laserstrahls beim Durchtritt durch die Flamme fluktuerte der Ort der Anregung der OH-Radikale räumlich bei jedem Laserschuss. Auch das fluoreszierende Licht wurde durch *beam steering* abgelenkt. Dies wurde daran deutlich, dass der Schnittpunkt der gefundenen Flammenfronten aus den beiden OH-PLIF-Bildern und dem 1-D-Probevolumen nicht identisch war. Der Abstand zwischen den Schnittpunkten der Flammenfronten mit der

(vermuteten) Lage des 1-D-Probevolumens wird im Folgenden als „Separationsdistanz“ bezeichnet. Ihr idealer Wert beträgt 0 mm.

Zur Bewertung des Einflusses der Unsicherheiten aus der OH-PLIF-Messtechnik (Präzision des berechneten Flammennormalenvektors) auf die Skalararten wurde wie in [96] die Flammenfrontdicke herangezogen. Diese wurde über den Temperaturverlauf definiert und nach [74] berechnet:  $\delta_t = (T_{\max} - T_{\min})/|\nabla T|_{\max}$ . Die Flammenfrontdicke ist in den vorgemischten Fällen MHF 5 und 6 (vgl. Abb. 4.5 in Kap. 4.2) im Mittel über viele Laserschüsse gleich (vgl. Abb. 2.6 in Kap. 2.3) und unabhängig von der OH-PLIF-Messtechnik. Daher wird davon ausgegangen, dass die aus dem Ergebnis der OH-PLIF-Messung berechnete Flammenfrontdicke ein geeigneter Indikator für die Validität der Messtechnik ist.

In Abb. 3.31 (links) ist die Auswirkung der Größe der Separationsdistanz auf die berechnete Flammenfrontdicke (berechnet über den Temperaturverlauf aus den Raman-Daten) in der Flamme MHF 5 gezeigt. Eine Sensitivität tritt nicht auf. D. h. die errechnete Flammenfrontdicke und damit der Flammennormalenvektor ist auch dann korrekt, wenn der Schnittpunkt der Flammenfronten mit dem 1-D-Probevolumen nicht auf den gleichen Ort fallen. Die Ursache für eine Separationsdistanz größer null war, dass die Laserlichtschnitte sich nicht exakt auf dem 1-D-Probevolumen der Raman-Rayleigh-Messung schnitten. Dies lag, wie oben beschrieben, am Messaufbau und der turbulenten Flamme. Die Standardabweichung vom Mittelwert der Separationsdistanz bei einem exemplarischen Datensatz (MHF 5) von 10.000 Bildern betrug ca. 250  $\mu\text{m}$ . Da keine Sensitivität auf die Separationsdistanz messbar war, mussten keine Messungen verworfen werden. Zur Einordnung der Größenordnung von  $\delta_t$  ist in Abb. 3.31 die theoretische Flammenfrontdicke, berechnet aus einer gestreckten laminaren 1-D-Rechnung, eingezeichnet (graue horizontale Linie). Sie beträgt bei  $\phi = 0,85$  ca.  $\delta_{t,\text{theor}} = 440 \mu\text{m}$ . Die mittlere gemessene Flammenfrontdicke ist wegen der vorherrschenden Turbulenz größer.



**Abbildung 3.31:** Sensitivitätsanalysen für die OH-PLIF-Messtechnik: Auswirkung der Separationsdistanz (links) und des Winkels zwischen 1-D-Probevolumen und Flammennormalenvektor (rechts) auf die berechnete Flammenfrontdicke ( $\delta_t$ ). Es sind die Daten von MHF 5 (rot, links und rechts) und MHF 6 (blau, rechts) gezeigt. Die Punkte entsprechen dem Mittelwert aus einem Intervall der Separationsdistanz von 0,1 mm (links) bzw. einem Intervall der Winkel von  $\theta = 5^\circ$  (rechts). Die vertikalen Balken entsprechen der Standardabweichung. Die horizontale grau gepunktete Linie repräsentiert die Flammenfrontdicke der gestreckten (theor.) 1-D-Rechnung (Cantera, mcs,  $\phi = 0,85$ ,  $a = 1000 \text{ 1/s}$ ). Die vertikale schwarze Linie rechts zeigt den Winkel an, ab dem die Daten verworfen wurden ( $\theta > 50^\circ$ ).

In Abb. 3.31 (rechts) ist die Auswirkung der Größe der Winkels ( $\theta$ ) zwischen dem 1-D-Probevolumen der Raman-Rayleigh-Messung und dem Flammennormalenvektor gezeigt. Eine Sensitivität tritt ab ca.  $\theta = 65^\circ$  bei MHF 5 und ca.  $\theta = 45^\circ$  bei MHF 6 auf. D. h.

der errechnete Flammennormalenvektor und damit die Flammenfrontdicke ist bei großen Schnittwinkeln mit einem systematischen Fehler behaftet. Um nicht zu viele Datenpunkte zu verlieren, aber dennoch den Einfluss nicht korrekter Flammennormalenvektoren auf die Skalarwerte zu minimieren, wurden alle Datenpunkte, bei welchen der Winkel  $\theta > 50^\circ$  war, verworfen. Dies war bei ca. 23 % aller gefundenen Flammenfronten der Fall. Sie gingen für die weitere Auswertung verloren.

## Zusammenfassung

Im vorangehenden Unterkapitel wurde die Auswertung der OH-PLIF-Daten beschrieben. Das Ergebnis davon war der instantane Flammenöffnungswinkel. Außerdem erlaubten die gewonnenen Informationen, den räumlichen Verlauf der simultan gemessenen Temperaturen und Spezieskonzentrationen (mit kombinierter Raman- und Rayleigh-Messtechnik) so zu korrigieren, als wäre immer senkrecht zur Flammenfront gemessen worden. Durch die beschriebenen Schritte zur Diskriminierung von Bildern ohne oder mit nicht zu detektierender Flammenfront (bezogen auf das Signal: Gradientenstärke, Vorzeichen des Gradienten, Nähe zum Rand des Kamera-Chips, Schnittwinkel zum Raman-Rayleigh-Probevolumen) konnten aus 40.000 Laserschüssen nur ca. 10.000 Flammenfronten extrahiert werden (jeweils bei MHF 7 und 8).

### 3.4.5 Berechnung der lokalen Stratifizierung

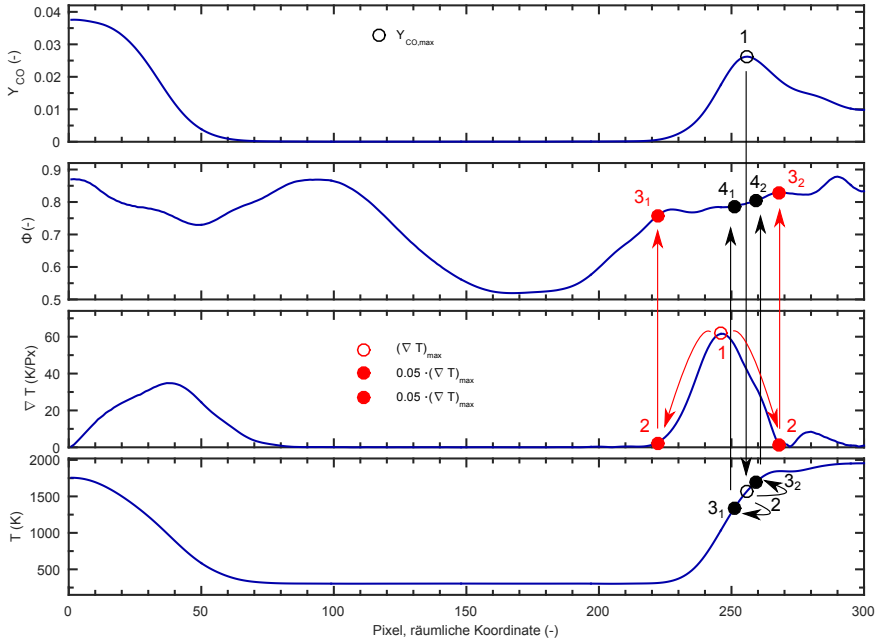
#### Verschiedene Definitionen der lokalen Stratifizierung

Im folgenden Abschnitt wird dargelegt, wie die lokale Stratifizierung über die Flammenfront hinweg bestimmt wird. Dafür existieren verschiedene Definitionen. Zwei Definitionen werden hier erläutert und in Abb. 3.32 gegenübergestellt:

1. Die Änderung  $\Delta\phi$  wird auf eine räumliche Distanz  $\Delta r$  bezogen (vgl. [92, 98]). Die untere und obere Grenze, bei welcher der Wert für  $\phi$  ausgelesen wird, liegt bei  $\nabla T = 5\% \cdot \nabla T_{\max}$ . Der räumliche Verlauf des Äquivalenzverhältnisses wird aus den 1-D-Raman-/Rayleigh-Messdaten berechnet. Da das 1-D-Probevolumen die turbulente Flammenfront in stochastisch verteilten Winkeln schneidet (vgl. Abb. 4.15 in Kap. 4.2.3), muss auf diesen Winkel korrigiert werden, um den flammennormalen Verlauf der Skalarwerte berechnen zu können (vgl. Kap. 3.4.4).
2. Die Änderung  $\Delta\phi$  wird auf eine Temperaturänderung  $\Delta T$  bezogen. Das Temperaturintervall, in dem  $\Delta\phi$  untersucht wird, hat seine Grenzen 200 K unterhalb und 100 K oberhalb der Temperatur, bei der die CO-Konzentration ihr Maximum erreicht.

Das Vorgehen zur Bestimmung von  $\Delta\phi/\Delta T$  ist anhand der schwarzen Punkte, versehen mit schwarzen Nummern, dargestellt:

- 1: Räumliche Position des Maximums des CO-Massenbruchs auslesen.
- 2: Temperatur bei  $Y_{CO,max}$  auslesen.
- 3<sub>1</sub>:  $T_{Y_{CO,max}} - 200$  K bestimmen.
- 3<sub>2</sub>:  $T_{Y_{CO,max}} + 100$  K bestimmen.
- 4:  $\Delta\phi/\Delta T = (\phi_{42} - \phi_{41})/(T_{32} - T_{31}) = 237 \cdot 10^{-6} \text{ 1/K}$  berechnen.



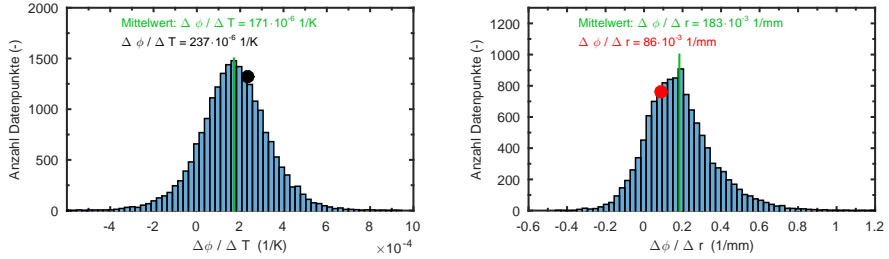
**Abbildung 3.32:** Gegenüberstellung der Definitionen der Stratifizierung:  $\Delta\phi/\Delta T$  (schwarz) und  $\Delta\phi/\Delta r$  (rot). Berechnung anhand der exemplarischen Verläufe des CO-Massenbruchs ( $Y_{CO}$ ), des Äquivalenzverhältnisses  $\phi$ , des Gradienten der Temperatur ( $\nabla T$ ) und der Temperatur  $T$ .  $\Delta\phi/\Delta T = (\phi_{4_2} - \phi_{4_1}) / (T_{3_2} - T_{3_1}) = 237 \cdot 10^{-6} \text{ 1/K}$  (schwarz).  $\Delta\phi/\Delta r = (\phi_{3_2} - \phi_{3_1}) / (r_{2_2}^* - r_{1_1}^*) = 86 \cdot 10^{-3} \text{ 1/mm}$  (rot); mit der Radialkoordinate  $r^*$ , die auf flammennormale Richtung korrigiert wurde.

Das Vorgehen zur Bestimmung von  $\Delta\phi/\Delta r$  ist anhand der roten Punkte, versehen mit roten Nummern, dargestellt:

- 1: Räumliche Position des Maximums des Gradienten der Temperatur bestimmen.
- 2: Position der Werte von  $5\% \cdot (\nabla T)_{\max}$  auslesen.
- 3:  $\Delta\phi/\Delta r = (\phi_{3_2} - \phi_{3_1}) / (r_{3_2}^* - r_{3_1}^*) = 86 \cdot 10^{-3} \text{ 1/mm}$  berechnen. Dabei bezeichnet  $r^*$  die räumliche Koordinate, die mittels des Flammenwinkels zu einer flammennormalen Koordinate korrigiert wurde;  $r^*$  ist in Abb. 3.32 nicht gezeigt.

Die für dieses Beispiel (vgl. Abb. 3.32) berechneten Stratifizierungswerte betragen:  $\Delta\phi/\Delta T = 237 \cdot 10^{-6} \text{ 1/K}$  und  $\Delta\phi/\Delta r = 86 \cdot 10^{-3} \text{ 1/mm}$ .

Zur Bewertung der Vergleichbarkeit der gefundenen Werte der Stratifizierung sind in Abb. 3.33 die Zahlenwerte (abgeleitet aus Abb. 3.32) relativ zur Gesamtheit aller gefundenen Stratifizierungen (in der turbulenten Flamme MHF 7) eingetragen. Daraus ist ersichtlich, dass beide Definitionen schwer miteinander vergleichbar sind: Das herausgegriffene Beispiel liegt an einer unterschiedlichen relativen Position im Histogramm ( $\Delta\phi/\Delta T$ , schwarzer Punkt, Abb. 3.33 links bzw.  $\Delta\phi/\Delta r$ , roter Punkt, Abb. 3.33 rechts). Die Form der Histogramme unterscheidet sich.

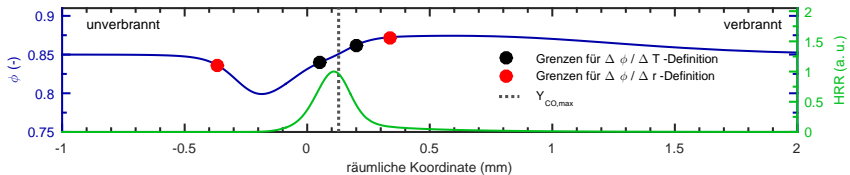


**Abbildung 3.33:** Vergleich der Definitionen der Stratifizierung ( $\Delta\phi/\Delta T$  (links) und  $\Delta\phi/\Delta r$  (rechts)) anhand eines Beispielerwertes relativ zur Gesamtheit aller gefundenen Stratifizierungen in der Flamme MHF 7. Der schwarze Punkt (links) und der rote Punkt (rechts) repräsentieren den berechneten Zahlenwert der Stratifizierung aus dem Beispiel in Abb. 3.32. Die vertikale grüne Linie bezeichnet den Mittelwert der jeweiligen Verteilung.

### Bewertung der verschiedenen Definitionen der Stratifizierung

In dieser Arbeit wurde die Stratifizierung über  $\Delta\phi/\Delta T$  definiert. Diese bietet gegenüber der Definition  $\Delta\phi/\Delta r$  den Nachteil, dass hier kein räumlicher Gradient bestimmt wird, der direkt die Triebkraft für die Diffusion ist. Sie bietet jedoch folgende Vorteile:

- In Bezug auf die Flammentheorie:
  - Die Stratifizierung wird an der Stelle ermittelt, an der die Wärmefreisetzung maximal ist. Hier finden die entscheidenden chemischen Reaktionen statt. Daher wird erwartet, dass der Einfluss der Stratifizierung hier am größten ist. Der Ort der maximalen Wärmefreisetzung liegt räumlich sehr nahe ( $r \approx 16 \mu\text{m}$ , bei  $\phi = 0,85$ , vgl. Kap. 2.4 und Abb. 3.34) am Ort der maximalen CO-Konzentration. Anders als die maximale Wärmefreisetzung selbst ist dieser messtechnisch (über CO-LIF und CO-Raman) gut erfassbar.
  - Die Grenzen, in welchen  $\Delta\phi$  berechnet wird, sind in der 1-D-Rechnung so schmal, dass nur der monotone Anstieg von  $\phi$  in die Auswertung einbezogen wird (vgl. Abb. 3.34). Bei  $\Delta\phi/\Delta r$  befindet sich die untere Grenze, bei der  $\phi$  ausgelesen wird, noch vor dem lokalen Minimum von  $\phi$ . Dadurch wird der tatsächlich vorhandene Gradient von  $\phi$  verschmiert.



**Abbildung 3.34:** Vergleich der Definitionen der Stratifizierung ( $\Delta\phi/\Delta T$  (schwarze Punkte) und  $\Delta\phi/\Delta r$  (rote Punkte)) anhand einer 1-D-Rechnung (Cantera, mcs,  $\phi = 0,85$ ,  $a = 1000$  1/s). Die schwarzen und roten Punkte spiegeln jeweils den Bereich wider, in dem  $\Delta\phi$  für die unterschiedlichen Definitionen der Stratifizierung berechnet wird. Sie wurden nach dem gleichen Vorgehen erstellt, wie es in Abb. 3.32 für die Messdaten beschrieben ist. In grün ist die Wärmefreisetzung (engl. *heat release rate* (HRR)) dargestellt. Die graue gestrichelte Linie kennzeichnet den Ort des maximalen CO-Massenbruchs.

- Die Wahl des Temperaturintervalls als Normierungsgröße bietet den Vorteil, dass sie eine Flammenkoordinate ist. Daher ist die Übertragbarkeit der Ergebnisse auf andere Flammen leichter möglich als bei Normierung durch  $\Delta r$ .
- In Bezug auf die Messtechnik:
  - Bei der Berechnung der Stratifizierung über  $\Delta\phi/\Delta T$  ist es nicht nötig, die Radialkoordinate so zu korrigieren, dass der flammennormale Verlauf von  $\phi$  bekannt ist. Diese Korrektur der Radialkoordinate erfordert die Daten aus der OH-PLIF-Messung. Da innerhalb dieser eine erhebliche Anzahl an Bildern verworfen werden muss (vgl. Kap. 3.4.4), sinkt die Anzahl der Flammenfronten, die zur Auswertung verfügbar sind um ca. den Faktor 2. Dies ist als kritisch zu bewerten, da durch starke Konditionierung ohnehin nur eine geringe Anzahl an Messereignissen in die Auswertung einfließt (ca. 50 % der 40.000 Flammenfronten sind ohne Einbezug der OH-PLIF-Daten verwertbar, vgl. Tab. 4.3 in Kap. 4.3.3).
  - Die Wahl eines asymmetrischen Temperaturintervalls ( $\Delta\phi$  zwischen  $T_{\text{CO,max}} - 200 \text{ K}$  und  $T_{\text{CO,max}} + 100 \text{ K}$ ) ist robust, weil ein ausreichend großer Bereich von  $T$  (ca. 2,5 % Fehler) untersucht wird. Die untere Grenze des Temperaturbereichs ist hoch genug gewählt, um nicht ebenfalls das lokale Minimum von  $\phi$  einzubeziehen (vgl. Abb. 3.34). Dieses lokale Minimum von  $\phi$  ist durch die präferentielle Diffusion von  $\text{H}_2$  aus dem Frischgas in die Vorwärmzone der Flamme verursacht. Die obere Grenze ist niedrig genug, um nicht die Datenbasis unnötig zu beschneiden: Bei höheren Temperaturen als  $T_{\text{CO,max}} + 100 \text{ K}$  kann in den Messdaten häufig keine entsprechende Temperatur gefunden werden, da diese räumlich zu weit entfernt ist und nicht mehr innerhalb des 1-D-Probevolumens liegt.

# Kapitel 4

## Experimentelle Ergebnisse und Diskussion

### 4.1 Laminare Methanflammen mit H<sub>2</sub>-Kodotierung

Im folgenden Unterkapitel wird der Einfluss der H<sub>2</sub>-Kodotierung auf zwei generische laminare Flammen untersucht. Die Flammen unterschieden sich in der Streckungsrate. Dies geschieht als Vorstudie zur Messung von turbulenten Flammen (vgl. Kap. 4.2 f.). Der Anteil von H<sub>2</sub> am Brennstoff wird systematisch von 0 Vol.-% bis 40 Vol.-% variiert. Die beiden Flammen, der laminare Jet mit negativer und die V-Flamme ohne Streckung, werden gegeneinander und gegen eine laminare 1-D-Rechnungen als Basis verglichen. Die Auswirkungen der H<sub>2</sub>-Kodotierung, besonders auf die räumliche Gestalt der Flammenfront und die Struktur der Flamme ohne Turbulenzeinflüsse, werden charakterisiert.

#### 4.1.1 1-D-Messung in der Flammenfront

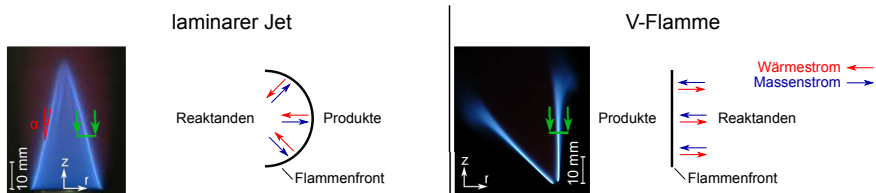
Der laminare Jet-Brenner und der vertikale Flammenbrenner (V-Flamme, Aufbau der Brenner vgl. Kap. 3.2.1: Abb. 3.5 und Abb. 3.6) wurden mit kombinierter Raman- und Rayleigh-Spektroskopie vermessen. Es wurde der in Kap. 3.2.3 gezeigte Messaufbau verwendet. Die Messung erfolgte an jeweils einer Position in den Flammen. Die Messposition lag in der Mitte der Flammenfront (vgl. Messpositionen, markiert in Abb. 4.1): So konnten ca. 2,75 mm unverbranntes Gemisch, die Flammenfront (ca. 500  $\mu\text{m}$ ) und ca. 2,75 mm reagiertes Gemisch vermessen werden. Das Probavolumen befand sich in der Flanke der Kegelflamme, 20 mm oberhalb der Düse des laminaren Jet-Brenners und 20 mm oberhalb des stabilisierenden Keramikdrahtes in der V-Flamme. Im laminaren Jet schnitt das Probavolumen die Flammenfront im Öffnungswinkel des Flammenkegels ( $\alpha \approx 20^\circ$ , vgl. Abb. 4.1 links). Betrieben wurden die Brenner vorgemischt, mit einem Äquivalenzverhältnis von  $\phi = 0,8$ . Der Wasserstoffanteil am Brennstoff wurde in 10-Vol.-%-Schritten von 0 Vol.-% bis 40 Vol.-% variiert. Es wurden die Temperatur, das Äquivalenzverhältnis und der Massenbruch der chemischen Hauptspezies (CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, CO, CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>O und H<sub>2</sub>) gemessen.

#### 4.1.2 Reduzierte Verbrauchsgeschwindigkeit von H<sub>2</sub> und CH<sub>4</sub> im laminaren Jet-Brenner

##### Orientierung der Diffusionsströme

Die Flammen des laminaren Jet-Brenners und der V-Flamme unterscheiden sich durch die Streckung und die Orientierung der Wärme und Massendiffusionsströme. Die Stre-

ckung (engl. *stretch*) der Flammenfront setzt sich aus der Dehnung aufgrund von Strömungsinhomogenitäten (engl. *strain*) und der Krümmung (engl. *curvature*) zusammen. Aus geometrischen Abschätzungen nach [50] wurde die Streckung in der dreidimensionalen, kegelförmigen Flamme am Punkt der Messung auf  $\kappa_{\text{lamJet}} = -50 \text{ 1/s}$  berechnet. Das heißt, ein Flammenelement wird beim Durchtritt durch die Flammenfront komprimiert. Die V-Flamme kann als ebene Flamme betrachtet werden und hat keine Streckung,  $\kappa_{\text{V-Flamme}} = 0 \text{ 1/s}$ . Des Weiteren sind die Wärmeströme und Massendiffusionsströme in beiden Flammen unterschiedlich orientiert. Wärmeströme sind dabei ins Frischgas gerichtet. Brennstoffmasse diffundiert in Richtung verbrannter Mischung. Wie aus Abb. 4.1 hervorgeht, sind die Ströme durch die ebene Flammenfront in der V-Flamme parallel angeordnet, während sie in der laminaren Jet-Flamme konfokal verlaufen.



**Abbildung 4.1:** Chemolumineszenzaufnahmen und schematische Gegenüberstellung der diffusiven Wärme- und Massenströme der Brennstoffspezies an der Flammenfront der laminaren Jet-Flamme (links) und V-Flamme (rechts); horizontaler Schnitt durch die Flammen (Blick in Pfeilrichtung) auf Höhe des Probevolumens (grün); Flammenöffnungswinkel  $\alpha$  der laminaren Jet-Flamme (links).

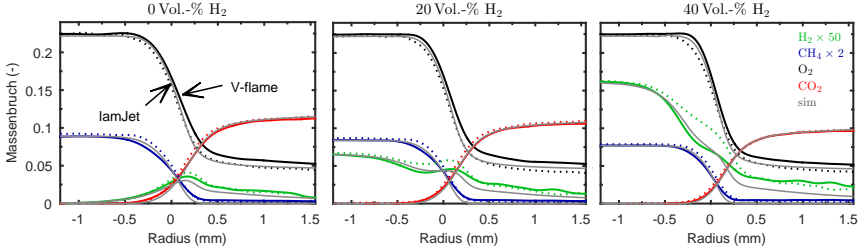
Bei Brennstoffen mit  $Le < 1$ , wie bei  $\text{H}_2$ , erzeugt dieses Ungleichgewicht in den Strömen eine verstärkte Verwinkelung der Flammenfront [74]. Durch die laminare Anströmung bleibt die kegelige Geometrie der Flamme vorgegeben. Die Form der Flammenfront ändert sich bei der untersuchten laminaren Jet-Flamme nicht. Die Verfügbarkeit der Brennstoffspezies für die Flammenfront scheint im laminaren Jet verbessert. Mit steigendem  $\text{H}_2$ -Anteil reduziert sich die Höhe des Flammenkegels. Das wird durch Erhöhen der Ausströmgeschwindigkeit kompensiert, sodass in allen Konfigurationen der Flammenwinkel identisch war ( $\alpha \approx 20^\circ$ , vgl. Abb. 4.1, links).

## Räumliche Struktur der Flammen

In Abb. 4.2 ist die räumliche Struktur von laminarem Jet und V-Flamme verglichen. Dazu wurden die Profile von 500 Einzelschüssen auf eine Temperatur von  $T = 1000 \text{ K}$  (entsprechend  $r = 0 \text{ mm}$ ) verschoben und dann gemittelt. Der Schnittwinkel zwischen Probevolumen und Flammenfront im laminaren Jet wurde durch eine geometrische Anpassung der Ortskoordinate berücksichtigt. Der direkte Vergleich der räumlichen Struktur beider Flammen im Ortsraum (vgl. Abb. 4.2) zeigt, dass sich die Stöchiometrie zu Beginn der Reaktionszone ( $r = -0,5$  bis  $0 \text{ mm}$ ) unterscheidet. Beim laminaren Jet fällt der  $\text{O}_2$ -Massenbruch örtlich früher ab. Bis  $r = 1,5 \text{ mm}$  nach der Flammenfront ist der  $\text{O}_2$ -Massenbruch um ca. 15 % niedriger als in der V-Flamme. Die Brennstoffe  $\text{CH}_4$  und  $\text{H}_2$  bleiben beim Eintritt in die Flammenfront noch länger in höheren Konzentrationen vorhanden. Das gilt für alle Kodotierungsgrade von  $\text{H}_2$  und ist besonders ausgeprägt bei 40 Vol.-%. Bei  $T = 1000 \text{ K}$  ist hier der  $\text{H}_2$ -Massenbruch im laminaren Jet um ca. 27 % erhöht. Der Temperaturanstieg über die Flammenfront ist bei beiden Flammen sehr ähnlich (nicht gezeigt). Die Messwerte werden mit der Berechnung einer eindimensionalen,



frei propagierenden Flamme (d. h. ohne Streckung) mit Multikomponententransport verglichen (GRI 3.0 Mech, Cantera).

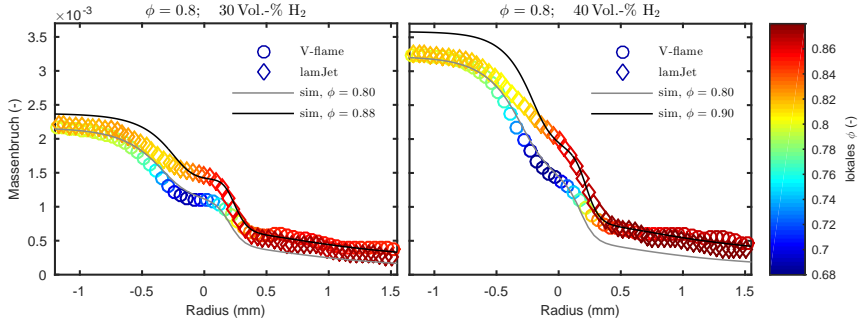


**Abbildung 4.2:** Vergleich der räumlichen Struktur von laminarer Jet-Flamme (gepunktet) und V-Flamme (durchgezogene Linie) bei H<sub>2</sub>-Kodotierung von 0, 20 und 40 Vol.-% (von links nach rechts). Das Äquivalenzverhältnis ist immer  $\phi = 0,8$ . Aufgetragen sind die gemessenen Massenbrüche der Spezies H<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, O<sub>2</sub> und CO<sub>2</sub>. Zum Vergleich sind die Verläufe einer frei propagierenden Flamme (grau) eingezeichnet. Bei  $r = 0$  mm beträgt  $T = 1000$  K.

Die Abweichung zur berechneten 1-D-Flamme liegt über weite Bereiche im Rahmen des Messfehlers. Besonders bei hohen Temperaturen ( $T > 1500$  K, entsprechend ca.  $r > +0,2$  mm) sind die Messwerte von H<sub>2</sub> aufgrund der geringen Konzentration stark rauschbehaftet. Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SNR) ist hier kleiner 5. Die Überhöhung, insbesondere von H<sub>2</sub>, zu Beginn der Flammenfront ( $-0,5 \text{ mm} < r < 0$  mm) ist jedoch signifikant und bei allen gemessenen Kodotierungsgraden von H<sub>2</sub> reproduzierbar.

Es wird vermutet, dass die Massenbrüche der Brennstoffspezies erhöht sind, weil sich die Verbrauchsgeschwindigkeit reduziert [108]. Einzelne Massenbrüche können nur durch präferentielle Diffusion oder Reaktion verändert werden. Die Konvektion wirkt auf alle Spezies und kann daher nur in Zusammenspiel mit der Reaktion die Konzentration einzelner Spezies ändern. Die Reaktion über andere Reaktionspfade als Folge unterschiedlicher Streckungsraten erscheint wenig wahrscheinlich. Es gibt keine Hinweise darauf. Der Nachtransport von unverbranntem Frischgas erfolgt im laminaren Jet nicht orthogonal zur Flammenfront und könnte so für steilere Gradienten von CH<sub>4</sub> und H<sub>2</sub> sorgen (vgl. Abb. 4.1). Außerdem ist die Diffusionsrichtung im laminaren Jet durch die gekrümmte Flammenfront eine andere. Alle möglichen Effekte scheinen durch die negative Streckung der Flammenfront im laminaren Jet verursacht. Die lokale Strömungsgeschwindigkeit an der Flammenfront wurde jedoch nicht gemessen, sodass ein Einfluss allein der Strömung nicht ausgeschlossen werden kann.

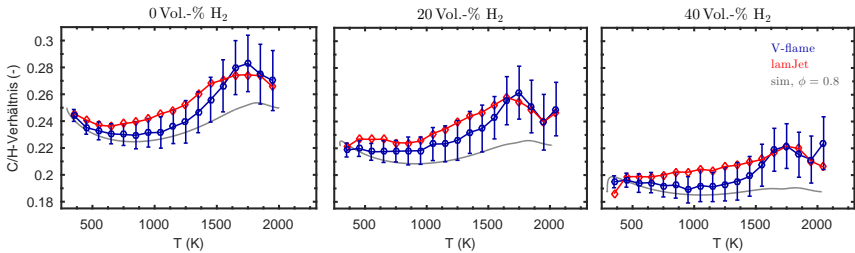
In Abb. 4.3 ist der unterschiedliche Verlauf des H<sub>2</sub>-Massenbruches bei laminarem Jet und V-Flamme dargestellt. Zusätzlich ist das lokale Äquivalenzverhältnis an den farblich kodierten Symbolen ablesbar. In der ungesteckten V-Flamme magert das Gemisch am Beginn der Flammenzone ab (bei  $r \approx -0,2$  mm; blaue Farbtöne, entsprechend  $\phi < 0,7$ ). Nach Durchgang durch die Flammenfront steigt es wieder auf höhere  $\phi$  und verhält sich exakt wie in der entsprechenden 1-D-Rechnung vorhergesagt. Das initial eingestellte  $\phi = 0,8$  wird in keiner Flamme nach der Reaktionszone wieder erreicht. Es bleibt bei höheren Werten um  $\phi \approx 0,85$ . Es wird vermutet, dass dies durch die geringe Dichte des Gemisches und der damit reduzierten Präzision der Messung bei hohen Temperaturen verursacht ist. Zu Beginn der Flammenfront liegen die Temperaturen bei  $T < 1000$  K. Damit ist die Präzision der Messwerte hier ausreichend, um die Hypothese zu bestätigen: Bei negativ gestreckter Flamme sinkt die Verbrauchsgeschwindigkeit von H<sub>2</sub> und CH<sub>4</sub>.



**Abbildung 4.3:** Räumliche Verteilung des  $H_2$ -Massenbruchs im laminaren Jet (Rauten) und in der V-Flamme (Kreise). Die Symbole sind farblich mit dem lokal vorliegenden Äquivalenzverhältnis kodiert. Eingestelltes Äquivalenzverhältnis im Frischgas:  $\phi = 0,8$ . Anteil  $H_2$  am Brennstoff beträgt 30 Vol.-% (links) und 40 Vol.-% (rechts). Zum Vergleich sind die Verläufe einer 1-D frei propagierenden Flamme (Cantera, Gri 3.0, mit eigener Diffusion für alle Spezies und Soret-Effekt – engl. *multi component Soret*, mcs) bei initialem  $\phi$  in Grau sowie bei einem höheren  $\phi = 0,88$  (links) bzw.  $\phi = 0,90$  (rechts) in Schwarz eingezeichnet. Bei  $r = 0$  mm beträgt  $T = 1000$  K.

Im laminaren Jet liegt das lokale  $\phi$  ab einer Temperatur von ca.  $T = 1000$  K (entsprechend  $r \geq 0$  mm), bei  $\phi_{30\%} \approx 0,88$  (Abb. 4.3, links) bzw. bei  $\phi_{40\%} \approx 0,90$  (Abb. 4.3, rechts). Die entsprechenden Verläufe der 1-D-Rechnung bei dieser Stöchiometrie sind zum Vergleich als schwarze Linien eingezeichnet. Das bedeutet, dass im laminaren Jet der Brennstoff angereichert wird. Die weitere Reaktion verläuft ab  $r \approx 0$  mm dann aber äquivalent zu einer 1-D-Flamme, die diese Stöchiometrie von Beginn an hätte (vgl. schwarze Linie).

### Verändertes C/H-Verhältnis durch präferentielle Diffusion



**Abbildung 4.4:** C/H-Verhältnis im Temperatur-Zustandsraum von laminarer Jet-Flamme (Rauten, rot) und V-Flamme (Kreise, blau) bei  $H_2$ -Kodotierung von 0, 20 und 40 Vol.-% (von links nach rechts). Das Äquivalenzverhältnis ist immer  $\phi = 0,8$ . Mittelwerte in einem 100-K-Intervall sind mit Symbolen (Rauten bzw. Kreise) markiert. Vertikale Fehlerbalken – exemplarisch für die V-Flamme gezeigt – entsprechen der Standardabweichung. Die graue Linie entspricht einer eindimensionalen, frei propagierenden Flamme (mcs).

Wie in Abb. 4.4 dargestellt, ist die laminare Jet-Flamme im Temperaturbereich  $500 \text{ K} < T < 1600 \text{ K}$  durch ein höheres C/H-Verhältnis als die V-Flamme gekennzeichnet. Dies deutet auf präferentielle Diffusion von  $H_2$  hin. Die Verbrauchsgeschwindigkeit der Brennstoffspezies ( $CH_4$  und  $H_2$ ) ist im negativ gestreckten laminaren Jet reduziert (s. o.).  $H_2$

diffundiert entlang seines Gradienten zu niedrigen Konzentrationen im Abgas. Das geschieht deutlich schneller als bei CH<sub>4</sub>.

Dabei sind folgende Fälle unterscheidbar: Ohne Kodotierung von H<sub>2</sub> (Abb. 4.4, links) diffundiert H<sub>2</sub> von dem Ort seiner Produktion in Richtung Frischgas und Abgas. Bei Kodotierung von H<sub>2</sub> (Abb. 4.4, Mitte und rechts) diffundiert H<sub>2</sub> vom Frischgas in Richtung Abgase. Das C/H-Verhältnis erhöht sich in der Flammenfront, obwohl höhere H<sub>2</sub>-Konzentrationen vorliegen als in der ungestreckten Flamme (vgl. Abb. 4.3). Die Entmischung findet dann statt, weil H<sub>2</sub> schneller aus dem Gebiet der Flammenfront wegdiffundiert als CH<sub>4</sub>. Es liegen weniger H<sub>2</sub>-Spezies vor. Damit steigt das C/H-Verhältnis.

## Zusammenfassung

Im vorangehenden Unterkapitel wurde der Einfluss der H<sub>2</sub>-Kodotierung auf zwei generische laminare Flammen untersucht. In der ungestreckten V-Flamme werden die Speziesverläufe sehr gut durch die Simulation einer eindimensionalen, frei propagierenden Flamme getroffen. Die stärkeren Diffusionseffekte bei Kodotierung von bis zu 40 Vol.-% H<sub>2</sub> werden in der Simulation vollständig reproduziert. Damit folgt, dass sich die V-Flamme sehr gut als Kalibrierflamme für das Raman-/Rayleigh-Messsystem eignet, auch für Methanflammen mit H<sub>2</sub>-Kodotierung.

Eine andere Beobachtung erfolgt im laminaren Jet: Die negative Streckung führt zu Beginn der Flammenfront zu einer Anreicherung der Brennstoffe CH<sub>4</sub> und H<sub>2</sub>. Dies geschieht aufgrund der reduzierten Verbrauchsgeschwindigkeit. Je höher die H<sub>2</sub>-Kodotierung, desto stärker ausgeprägt ist der Effekt. Das erhöhte C/H-Verhältnis im Temperaturbereich von 500 K < T < 1600 K lässt darauf schließen, dass H<sub>2</sub> aus dem Bereich des angereicherten Brennstoffes schneller als CH<sub>4</sub> wegdiffundieren kann. Das heißt, geringe negative Streckung ( $\kappa_{\text{lam,Jet}} = -50 \text{ l/s}$ ) verursacht eine erhebliche Abweichung der Speziesverläufe und damit der Flammenstruktur. Eine 3-D-DNS der laminaren Jet-Flamme, in der diese Beobachtung auch in der Simulation erkennbar werden sollte, ist bisher nicht erstellt worden. Da Flammenelemente mit negativer Streckung auch in einer turbulenten Flamme auftreten können [74], liefert diese Untersuchung wichtige Erkenntnisse für die Vermessung turbulenter Flammen mit H<sub>2</sub>-Kodotierung.

## 4.2 Charakterisierung der Flammenkonfigurationen MHF 5-8

Im folgenden Unterkapitel werden die vier Flammenkonfigurationen *Methane Hydrogen Flame* (MHF) 5-8 charakterisiert. Ihre Betriebsparameter sind in Abb. 4.5 definiert. Dazu werden die Flammen zunächst makroskopisch, anhand von Chemolumineszenzaufnahmen, analysiert. Im Folgenden werden Radialprofile der Skalarwerte in acht axialen Höhen präsentiert. Die Darstellung des Mittelwertes und der Fluktuationen der Speziesmassenbrüche, der Temperatur und des Äquivalenzverhältnisses erfolgt dichtegewichtet. Der Unterschied der Skalarwerte mit und ohne Dichtegewichtung wird besprochen. Der Fokus liegt darauf, anhand der Skalarwerte und der Betriebsparameter, das Erscheinungsbild der vier Flammenkonfigurationen MHF 5-8 im physikalischen Raum zu diskutieren. Zusätzlich soll eine Datenbasis geschaffen werden, mit der relevante Positionen in den Flammen zur Untersuchung der Mikrostruktur der Flamme identifiziert werden können. Die dreidimensionale Orientierung der Flammenfront wird am Ort der hochaufgelösten Daten ausgewertet. Der Einfluss der präferentiellen Diffusion von  $H_2$  wird am Übergang der Gasströme von Pilot und Ring 1 untersucht. Anschließend wird der Grad der Umsetzung der chemischen Energie in Wärme in den einzelnen Flammen besprochen.

### 4.2.1 Makroskopische Einordnung der Flammen

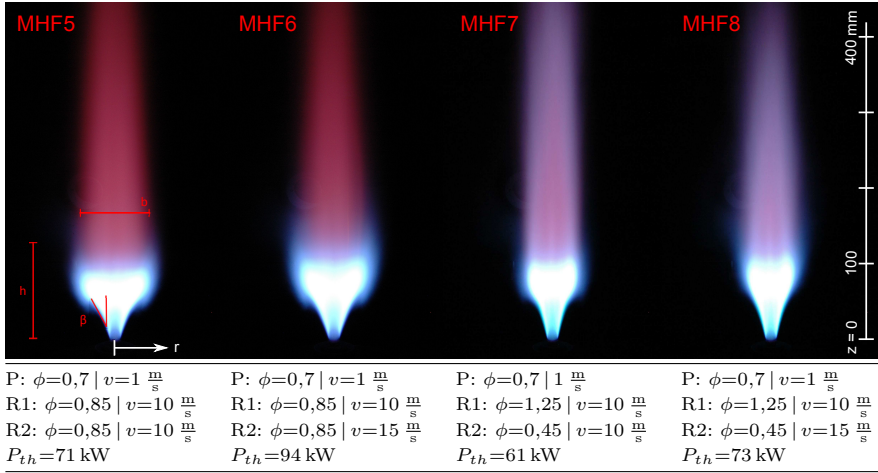
In diesem Abschnitt werden anhand der zeitlich gemittelten Chemolumineszenzaufnahmen der Flammen MHF 5-8 makroskopische Größen (Flammenöffnungswinkel, Kegelbreite der Flamme und maximale Höhe der Ausbrandzone) besprochen. Auf diese Größen wird bei der Besprechung der Skalarwerte (vgl. Kap. 4.2.2) erneut eingegangen. Zur Erinnerung sind in Abb. 4.5 Fotografien der Flammen MHF 5-8 des stratifizierten Brenners (vgl. Abb. 3.3 in Kap. 3.2.1) und deren Betriebsparameter gezeigt.

Der Öffnungswinkel  $\beta$  der Flammen, zwischen Brennerachse und Flammenkontur, (Def. in Abb. 4.5, links) wurde in einer Höhe von  $z = 30$  mm über dem Brenneraustritt bestimmt. Die Winkel sind in Tab. 4.1 aufgeführt. Die Flammenkegel sind dadurch gekennzeichnet, dass der Öffnungswinkel bei den Fällen mit Scherung (MHF 6 und 8;  $v_{R2} = 15$  m/s) kleiner ist als bei den Referenzfällen ohne Scherung (MHF 5 und 7). Hier ist die Ausströmgeschwindigkeit in Ring 2 identisch mit der in Ring 1 und beträgt 10 m/s. In den stratifizierten Konfigurationen (MHF 7 und 8) ist der Flammenöffnungswinkel immer kleiner als in den vorgemischten Referenzfällen (MHF 5 und 6).

**Tabelle 4.1:** Flammenöffnungswinkel  $\beta$  bei  $z = 30$  mm, maximale radiale Kegelbreite  $b$  und maximale Höhe der Reaktionszone  $h$ , bewertet anhand des Übergangs der blauen Chemolumineszenz (Zwischenprodukte  $CH^*$  und  $C_2^*$ ) und des roten Leuchtens (gasförmiges Wasser). Die Größen sind in Abb. 4.5, links, exemplarisch eingezeichnet.

	MHF 5	MHF 6	MHF 7	MHF 8
Öffnungswinkel der Flamme $\beta$ (°)	38	31	28	22
max. Kegelbreite $b$ (mm)	89,5	87	66,8	63,3
max. Höhe der Reaktionszone $h$ (mm)	150	197,5	> 400	> 400

Die maximale Breite des Flammenkegels  $b$  (Def. in Abb. 4.5, links) wurde in allen Flammen als Ausdehnung des hellsten, inneren Flammenkegels bestimmt. Hier war die Unterscheidbarkeit in den Chemolumineszenzaufnahmen am besten. Die Breite des Flammenke-



**Abbildung 4.5:** Fotografien der Flammen von MHF 5-8 (oben) und deren Betriebsparameter (unten). Die Aufnahmen sind durch eine Belichtungszeit von 400 ms zeitlich gemittelt. Definition der Höhe  $z$ , der radialen Richtung  $r$ , des Öffnungswinkel des Flammenkegels  $\beta$ , der Breite des Flammenkegels  $b$  und der Höhe der Ausbrandzone  $h$ . P: Pilot, R1: Ring 1, R2: Ring 2. Äquivalenzverhältnis  $\phi$ , Ausströmgeschwindigkeit  $v$  und thermische Nennleistung  $P_{th}$ . Anteil  $\text{H}_2$  am Brennstoff ist immer 20 Vol.-%.

gels beträgt bei den vorgemischten Fällen (MHF 5 und 6) 89,5 mm und 87 mm (vgl. Tab. 4.1). Die maximale radiale Ausdehnung der Kegel der stratifizierten Flammen (MHF 7 und 8) ist um ca. 25 % geringer. Die Scherung, induziert durch eine Ausströmgeschwindigkeit von 15 m/s in Ring 2 (bei MHF 6 und 8), reduziert die maximale Kegelbreite im Vergleich zu den Referenzfällen (MHF 5 und 7) um nur 2 % bzw. 5 %. Anhand der Flammenfotografien kann die räumliche Ausdehnung der Reaktionszonen auch in axialer Richtung ( $z$ -Koordinate) erfolgen. Das blaue Leuchten der Zwischenprodukte  $\text{CH}^*$  und  $\text{C}_2^*$  ([29]) ist in MHF 5 nahezu vollständig auf Ebenen  $z < 100 \text{ mm}$  limitiert. Nur in den Randbereichen zieht es sich bis in Höhen von  $z \approx 150 \text{ mm}$ . Es markiert die Reaktionszone. In Höhen darüber überwiegt das rötliche Leuchten des heißen gasförmigen Wassers (vgl. Abb. 3.8 rechts in Kap. 3.2.1), das charakteristisch für ein ausreagiertes Gemisch ist. In MHF 6 sind die blau leuchtenden Bereiche auch in größeren Höhen darüber erkennbar. In MHF 7 und 8 deuten die blau leuchtenden Bereiche bis über  $z = 400 \text{ mm}$  darauf hin, dass in den stratifizierten Flammen die Zwischenprodukte auch in dieser Höhe noch vorliegen und die Reaktion nicht vollständig abgeschlossen ist.

#### 4.2.2 Radialprofile der Skalare

Im folgenden Abschnitt werden anhand der Mittelwerte und der Fluktuationen der Speziesmassenbrüche die Flammenkonfigurationen MHF 5-8 charakterisiert. Die vier Fälle MHF 5-8 (vgl. Abb. 4.5) wurden in acht axialen Höhen ( $z = 7, 15, 30, 45, 60, 70, 80$  und  $100 \text{ mm}$  über dem Pilotrohr) radial mit kombinierter Raman- und Rayleigh-Spektroskopie vermessen. Es wurde der in Kap. 3.2.2 gezeigte Messaufbau verwendet. Bei der Messung wurde der Brenner in radialer Richtung sukzessive um 3 mm verschoben, sodass die 6 mm langen Probevolumina zu 50 % überlappten. Durch den großen Überlapp der Probevolumi-

na kann eine Unstetigkeit der zusammengesetzten Skalarprofile an den Übergangsstellen stark verringert werden. Die gezeigten Mittelwerte der Skalare (Temperatur, Äquivalenzverhältnis und Massenbruch der Spezies von CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, CO, CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>O und H<sub>2</sub>) umfassen so für jede radiale Position 1000 Messpunkte. Eine geeignete Darstellung der Radialprofile der Skalarwerte ist die Reynolds- oder Favre-Mittelung. Im folgenden Unterabschnitt werden die Unterschiede der Darstellungsarten in einer ausgewählten Ebene besprochen.

### Vergleich Favre- und Reynolds-Mittelung

Die Radialprofile der Skalarwerte können Reynolds-gemittelt dargestellt werden. Dabei wird durch die Reynolds-Zerlegung der momentane Wert einer fluktuierenden Größe  $Y$  in einen Reynolds-Mittelwert  $\bar{Y}$  und dessen Fluktuation  $Y'$  zerlegt [74]. Eine andere Darstellung der Skalarwerte erfolgt über die Dichtegewichtung (Favre-Gewichtung) als Favre-Mittelwert  $\tilde{Y}$  und RMS der Favre-Fluktuationen  $Y''_{\text{rms}}$  (engl. *root mean square*; dt. quadratischer Mittelwert). Die Berechnung für eine momentane skalare Größe  $Y$  bei einer Dichte  $\rho$  und  $n$  Messpunkten erfolgt nach den Gleichungen 4.1-4.3 [74]. Die Dichte  $\rho$  wird dabei mit dem gemessenen Druck  $p$ , der Temperatur  $T$ , den sieben Molenbrüchen der Spezies  $j$ , der universellen Gaskonstanten  $R$  und den molaren Massen  $M$  nach dem idealen Gasgesetz bestimmt (4.3). Die Berechnungsvorschrift für den in wissenschaftlichen Publikationen üblichen Begriff „RMS der Fluktuationen“ ist dabei identisch mit der Berechnung der Standardabweichung des Mittelwertes (bei Favre-Mittelung ist der Normierungsfaktor  $1/n$ , mit  $n$  als Anzahl der Messpunkte).

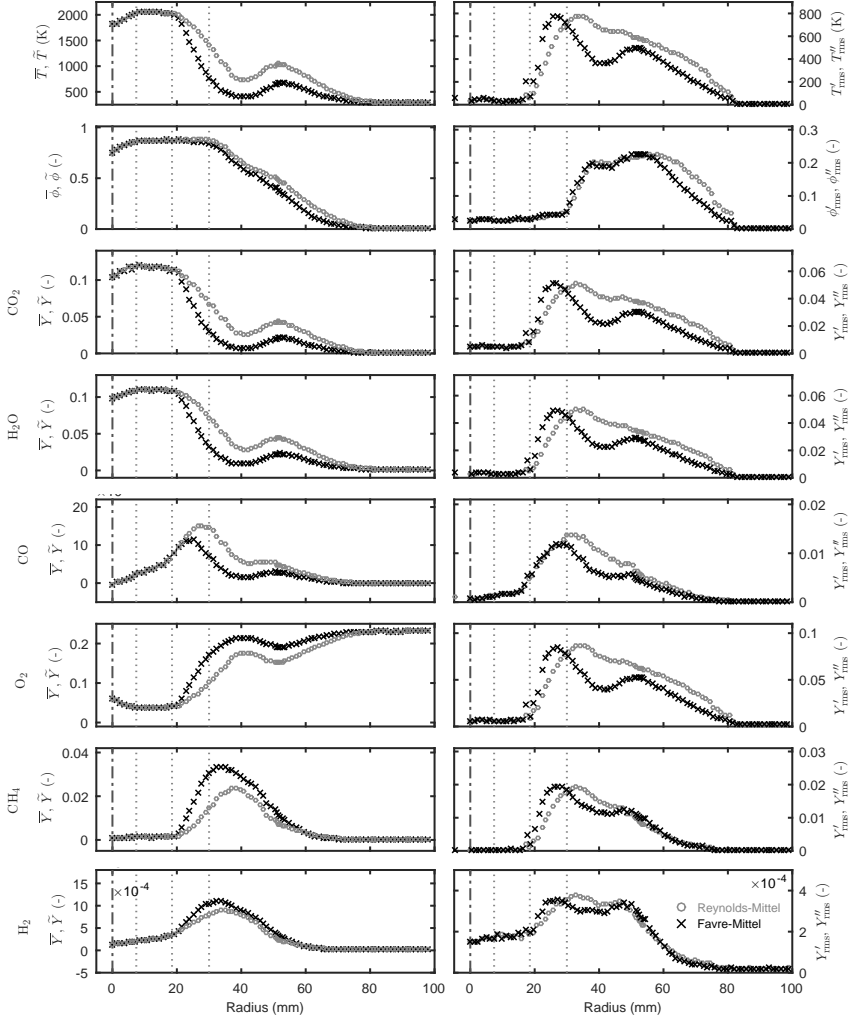
$$\tilde{Y} = \frac{\rho \cdot Y}{\bar{\rho}} = \frac{\frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n Y_i \cdot \rho_i}{\frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n \rho_i} \quad (4.1)$$

$$Y''_{\text{rms}} = \sqrt{\frac{\rho \cdot Y'' \cdot Y''}{\bar{\rho}}}, \quad \text{mit} \quad Y'' = Y - \tilde{Y} \quad (4.2)$$

$$\text{wobei} \quad \rho = \frac{p}{R_{\text{s,mix}} \cdot T}, \quad \text{mit} \quad R_{\text{s,mix}} = \frac{R}{\sum_{j=1}^7 M_j \cdot Y_j} \quad (4.3)$$

In Abb. 4.6 werden Favre- und Reynolds-Mittelwerte und -Fluktuationen in einer ausgewählten Höhe  $z = 60$  mm verglichen. Die Favre-Mittelwerte sind durch einen steileren Gradienten im Temperaturverlauf gekennzeichnet (Temperaturrampe bei  $r \approx 25$  mm). Der erneute Anstieg der Temperatur bei  $r \approx 50$  mm wird durch rückschlagende Flammenäste verursacht. Er befindet im Favre-Mittelwert auf einem insgesamt niedrigerem Niveau, weil Einzelmesswerte mit niedriger Temperatur, d. h. hoher Dichte, höher gewichtet werden als solche mit hoher Temperatur, d. h. niedriger Dichte. Ist in den Einzelmesswerten die Dichte konstant, sind Favre- und Reynolds-Mittelwerte und -Fluktuationen identisch (vgl.  $r = 0$  mm und  $r > 90$  mm). Gleiches gilt für die Spezies: Der Verlauf der Edukte (O<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>) ist in der Favre-Mittelung höher als in der Reynolds-Mittelung. Sie liegen häufiger bei niedrigen Temperaturen, d. h. hoher Dichte, vor als bei hohen Temperaturen. Für die Produkte und Zwischenprodukte (CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O und CO) gilt das Gegenteil: Ihre Konzentration ist bei variierenden Dichten im Einzelschuss im Favre-Mittel niedriger als

im Reynolds-Mittel. Beim Vergleich der Favre- von den Reynolds-Fluktuationen ergibt sich ein komplexeres Bild. Durch die Dichtgewichtung liegen die Verläufe im Bereich der Flamme nicht nur auf anderen Niveaus, sondern auch die Maximalwerte bei einzelnen Skalaren an anderen radialen Positionen als bei den Reynolds-Fluktuationen.



**Abbildung 4.6:** Vergleich der Favre- (Kreuze) und Reynolds-Mittelwerte (Kreise) und Fluktuationen exemplarisch anhand der Radialprofile von MHF 5 in einer Höhe  $z = 60$  mm über dem Brenner. Zur Verbesserung der Unterscheidbarkeit ist nur jeder zwölfte Messpunkt dargestellt.

In dieser Arbeit werden im Folgenden die Radialprofile der Skalar­daten nur dichte­gewich­tet (Favre-gewichtet) dargestellt, um den direkten Vergleich von Mess- und Simulations­daten zu ermöglichen. Der Grund hierfür liegt darin, dass bei der numerischen Simulation der Flamme mit Modellbildung, wie bei RANS (engl. *Reynolds-Averaged Navier-Stokes equations*), die Skalar­daten nur dichte­gewich­tet ausgegeben werden können. In den Abb. 4.7 bis Abb. 4.12 sind die Mittelwerte der Skalare (Temperatur, Äquivalenzverhältnis und Massenbrüche der Spezies von  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_4$  und  $\text{H}_2$ ) gezeigt. Die Massenbrüche der Spezies  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  sind in Anhang B in den Abb. B.1 f. dargestellt.

### Gleiche Betriebsbedingungen des Pilot bei allen MHF-Konfigurationen

In den unteren axialen Ebenen ( $z = 7 \text{ mm}$  bis  $30 \text{ mm}$ ) sind die Temperaturprofile der MHF 5-8 (Abb. 4.7) nahe der Symmetrielinie sehr ähnlich, da die Pilotflamme in allen Konfigurationen mit identischen Einstellungen von  $\phi = 0,7$ ,  $v = 1 \text{ m/s}$  betrieben wurde (vgl. Abb. 4.5). Die brennende Pilotflamme ist nahe der Mittelachse abreagiert und sorgt für Temperaturen im Bereich der adiabaten Flammentemperatur von  $T = 1860 \text{ K}$  und entsprechenden Spezieskonzentrationen:  $\text{CH}_4$  und  $\text{H}_2$  sind vollständig verbraucht, der  $\text{CO}_2$ -Massenbruch hat annähernd die Gleichgewichtskonzentration erreicht. Dies ist auch ein guter Indikator für die Abweichung der Ergebnisse zwischen den einzelnen Messungen. Die Radialprofile sind ausgehend von Radien  $r < 0 \text{ mm}$  gezeigt, um die Radialsymmetrie der Flamme nachzuweisen. Bereits bei einer Höhe von  $z = 7 \text{ mm}$  zeigt das zweite lokale Maximum der Temperatur, beim Radius des Pilotrohres ( $r = 7,5 \text{ mm}$ ), dass auch das Gemisch aus Ring 1 zu reagieren beginnt.

### Stratifizierte Konfigurationen brennen schmäler als die vorgemischten

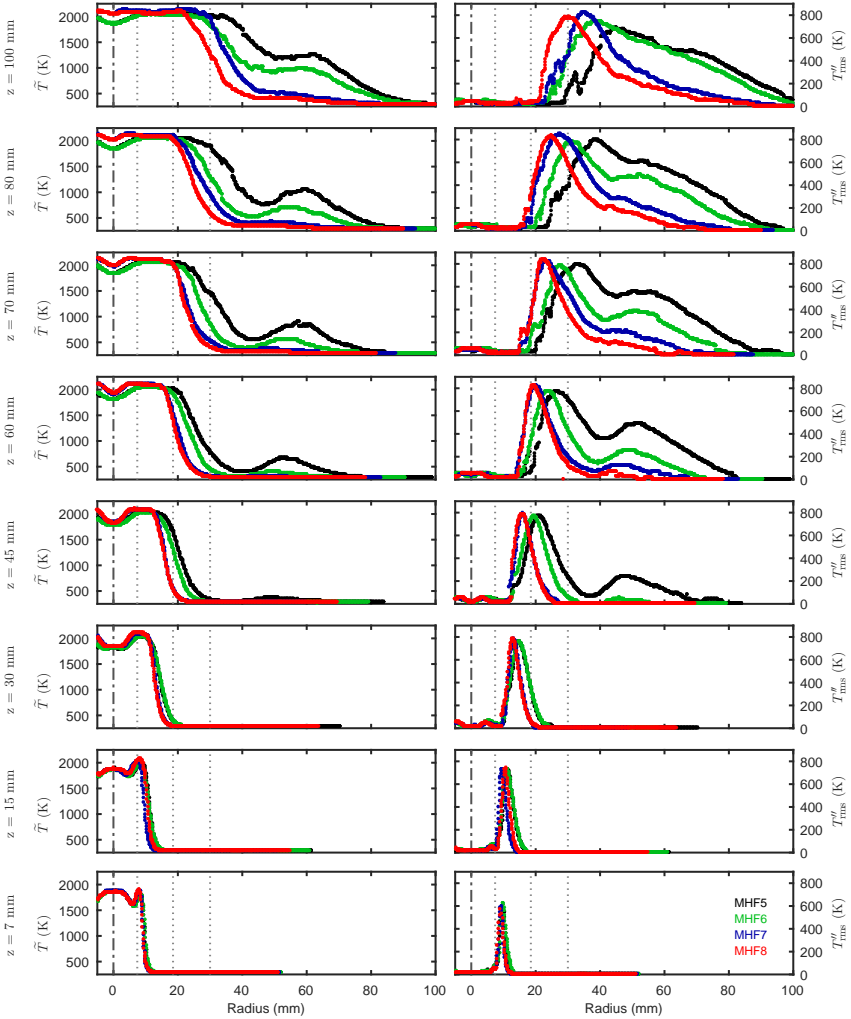
Wie aus den Temperaturprofilen (Abb. 4.7) ersichtlich und mit den Chemolumineszenzaufnahmen (Abb. 4.5) bestätigt, stabilisiert sich die Flamme in den vorgemischten Fällen MHF 5 und 6 tiefer (d. h. kleinere Werte von  $z$ ) und bei größeren Radien als in den stratifizierten Fällen MHF 7 und 8. Der Flammenkegel ist breiter (vgl. Kap. 4.2.1).

Das ist weder durch die unterschiedliche thermische Expansion noch die initial eingestellte Stratifizierung zwischen Ring 1 und Ring 2 zu erklären: Sowohl Konvektion, Turbulenzgrade als auch Flammengeschwindigkeiten sind in den korrespondierenden Fällen MHF 5 und 7 respektive MHF 6 und 8 sehr ähnlich und lassen eine gleiche Brenngeschwindigkeit erwarten. Die adiabate Flammentemperatur beträgt für  $\phi = 0,85$   $T_{\text{ad}} = 2079 \text{ K}$  und für  $\phi = 1,25$   $T_{\text{ad}} = 2113 \text{ K}$  und ist damit im Brennstoffreicheren nur 1,6% höher. Die thermische Expansion (bestimmt über die lokale Dichte) über das reagierende Gemisch ist in 1-D-Flamelets ( $a = 10001/\text{s}$ ) bei  $\phi = 1,25$  im Vergleich zu  $\phi = 0,85$  um 5,7% größer. Sie lässt folglich einen breiteren Flammenkegel in MHF 7 und 8 erwarten. Das deckt sich nicht mit den gemessenen Temperaturprofilen: Die stratifizierten MHF 7 und 8 brennen radial weiter innen als die vorgemischten MHF 5 und 6.

In MHF 7 und 8 liegt in der Mischungsschicht zwischen Ring 1 und Ring 2 über einige mm ein Bereich von  $0,85 < \phi < 1,25$  vor (vgl. Abb. 4.8). Bei dieser Stöchiometrie ist die laminare Brenngeschwindigkeit bis zu 25% höher als bei exakt  $\phi = 0,85$ , wie es in MHF 5 und 6 in Ring 1 und 2 vorliegt oder bei exakt  $\phi = 1,25$ , wie es in MHF 7 und 8 in Ring 2 vorliegt (vgl. Abb. 2.8 links in Kap. 2.4). Die Stöchiometrie von  $0,85 < \phi < 1,25$  liegt nur an radialen Positionen vor, an denen keine Reaktion stattfindet (z. B.  $z = 30 \text{ mm}$ :  $0,85 < \phi < 1,25$  im Bereich  $18 \text{ mm} < r < 21 \text{ mm}$  aber  $T''_{\text{rms,max}}$  bei  $r = 13 \text{ mm}$ ).

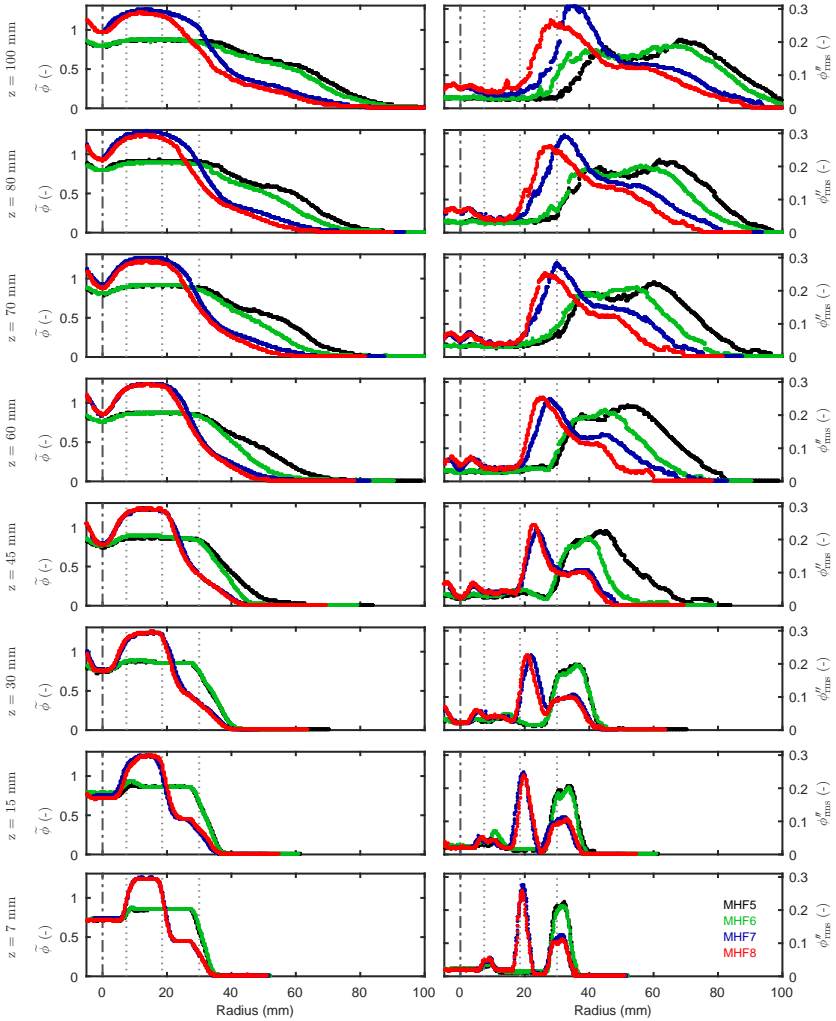


## Temperatur

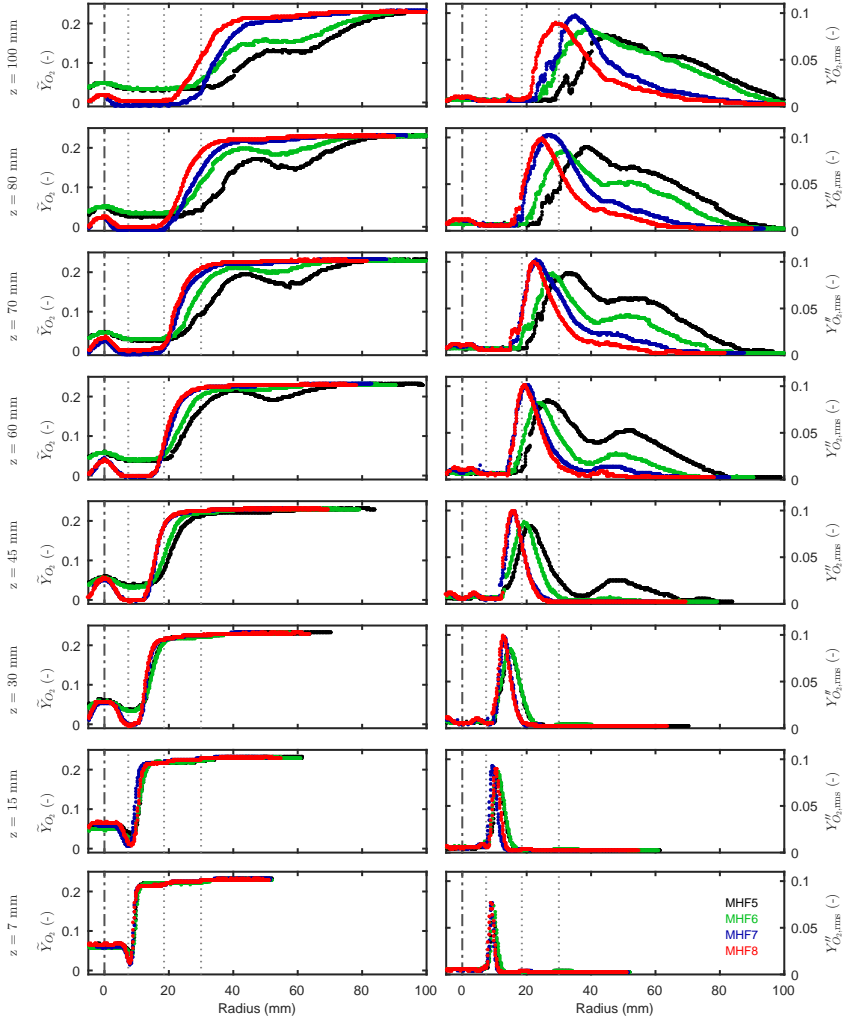


**Abbildung 4.7:** Radialprofile der Temperatur der Flammen MHF 5-8 in acht verschiedenen Höhen  $z$  über dem Brenner. Links: Favre-Mittel. Rechts: RMS der Favre-Fluktuationen. Die schwarze Symmetrielinie markiert die Mitte des Brenners, die grau gepunkteten Linien die radialen Positionen der Ringe des Brenners.

## Äquivalenzverhältnis

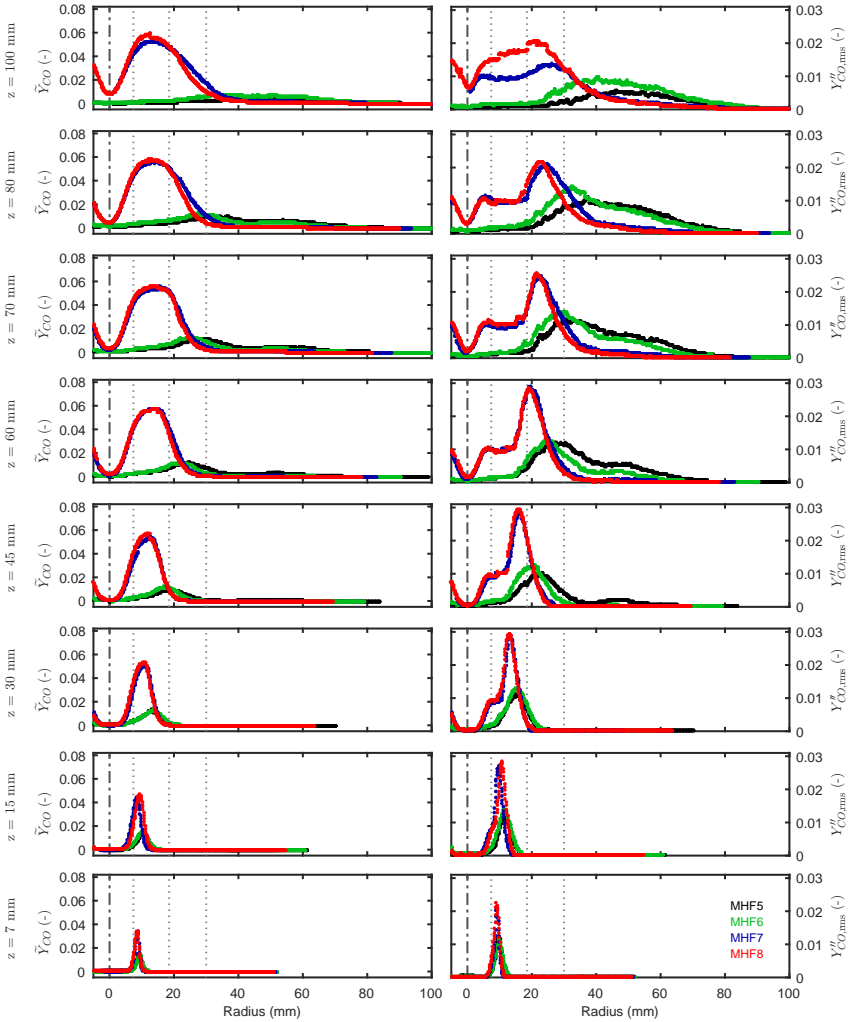


**Abbildung 4.8:** Radialprofile des Äquivalenzverhältnisses der Flammen MHF 5-8 in acht verschiedenen Höhen  $z$  über dem Brenner. Links: Favre-Mittel. Rechts: RMS der Favre-Fluktuationen. Die schwarze Symmetrielinie markiert die Mitte des Brenners, die grau gepunkteten Linien die radialen Positionen der Ringe des Brenners.

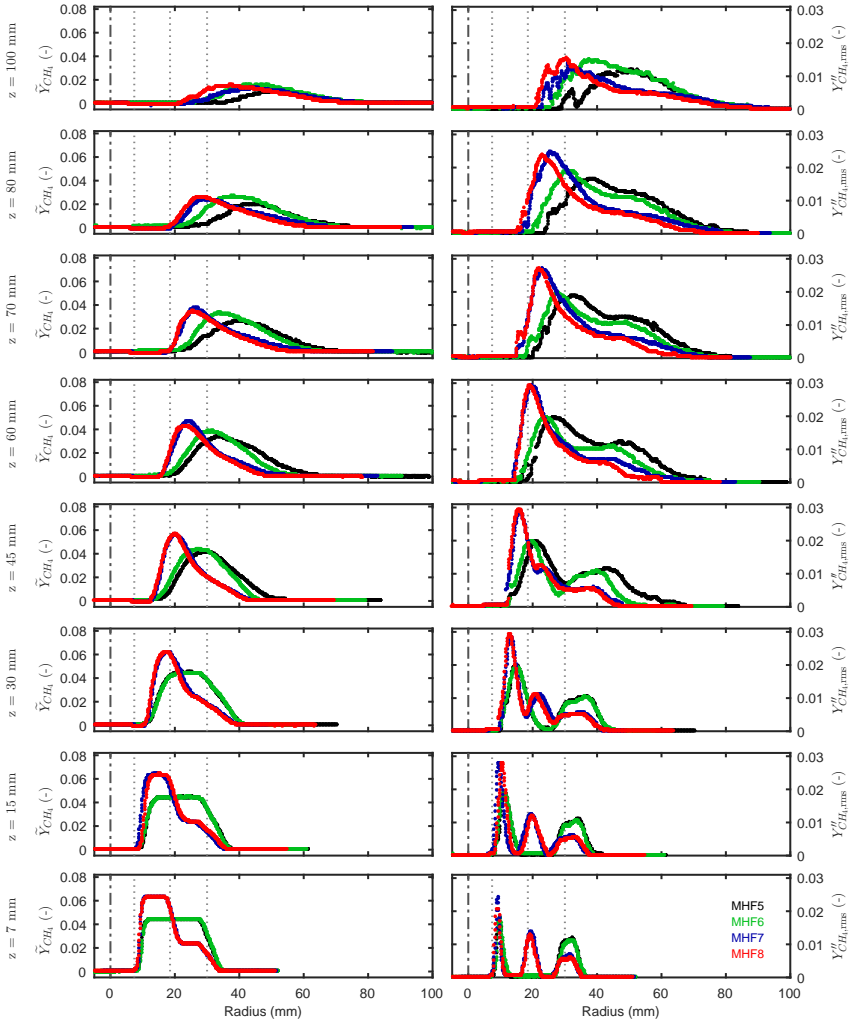
O<sub>2</sub>-Massenbruch

**Abbildung 4.9:** Radialprofile des Massenbruches von O<sub>2</sub> der Flammen MHF 5-8 in acht verschiedenen Höhen  $z$  über dem Brenner. Links: Favre-Mittel. Rechts: RMS der Favre-Fluktuationen. Die schwarze Symmetrielinie markiert die Mitte des Brenners, die grau gepunkteten Linien die radialen Positionen der Ringe des Brenners.

## CO-Massenbruch

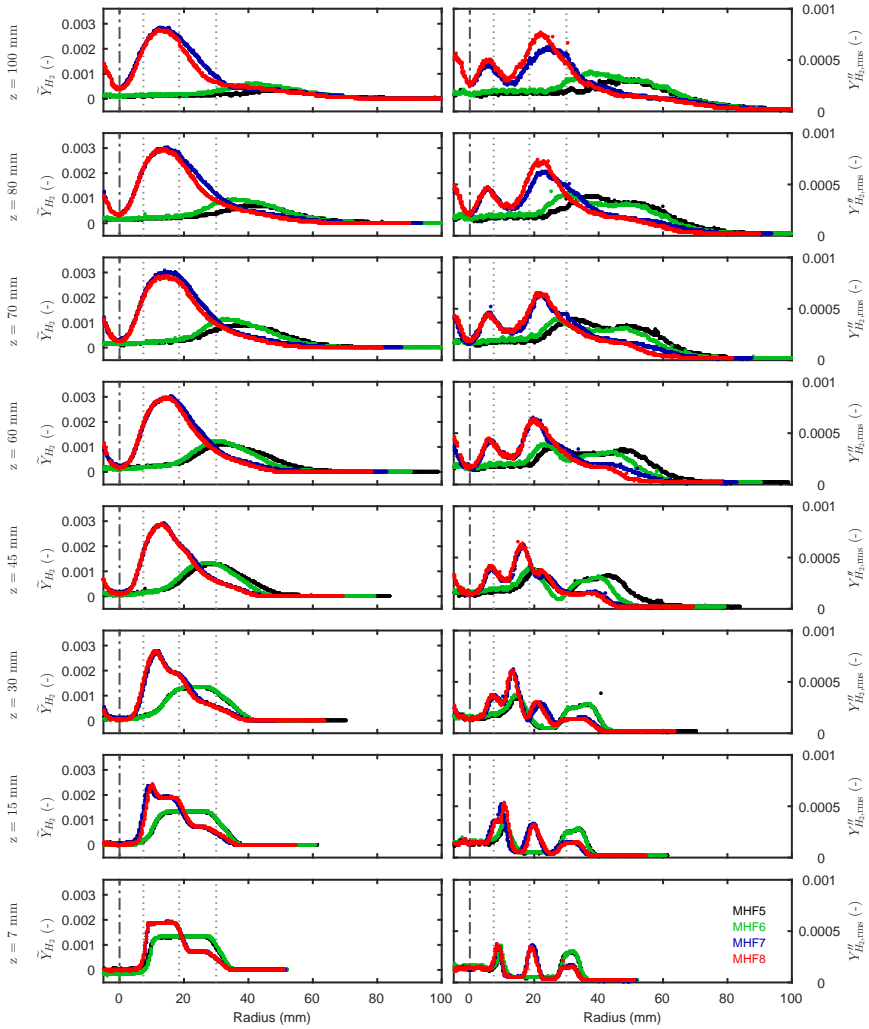


**Abbildung 4.10:** Radialprofile des Massenbruches von CO (bestimmt aus den CO-LIF-Daten) der Flammen MHF 5-8 in acht verschiedenen Höhen  $z$  über dem Brenner. Links: Favre-Mittel. Rechts: RMS der Favre-Fluktuationen. Die schwarze Symmetrielinie markiert die Mitte des Brenners, die grau gepunkteten Linien die radialen Positionen der Ringe des Brenners.

CH<sub>4</sub>-Massenbruch

**Abbildung 4.11:** Radialprofile des Massenbruches von CH<sub>4</sub> der Flammen MHF 5-8 in acht verschiedenen Höhen  $z$  über dem Brenner. Links: Favre-Mittel. Rechts: RMS der Favre-Fluktuationen. Die schwarze Symmetrielinie markiert die Mitte des Brenners, die grau gepunkteten Linien die radialen Positionen der Ringe des Brenners.

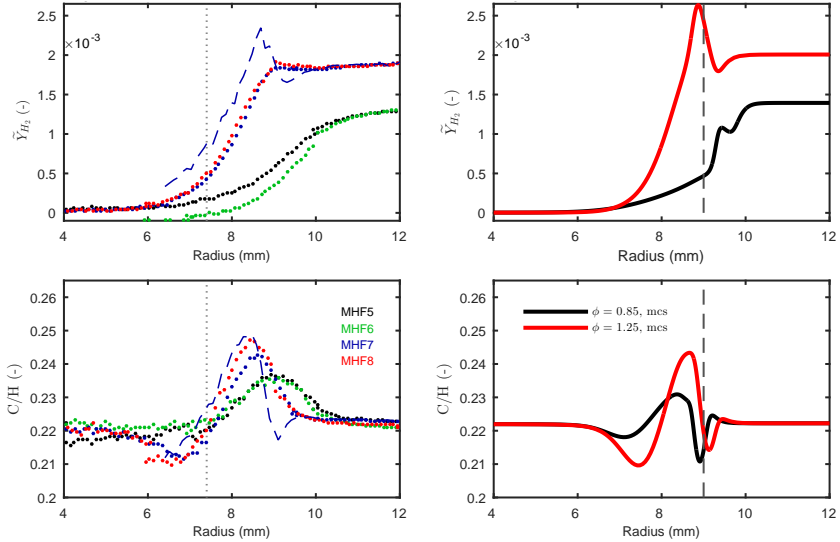
## H<sub>2</sub>-Massenbruch



**Abbildung 4.12:** Radialprofile des Massenbruches von H<sub>2</sub> der Flammen MHF 5-8 in acht verschiedenen Höhen  $z$  über dem Brenner. Links: Favre-Mittel. Rechts: RMS der Favre-Fluktuationen. Die schwarze Symmetrielinie markiert die Mitte des Brenners, die grau gepunkteten Linien die radialen Positionen der Ringe des Brenners.

Die Mischung zwischen Ring 1 und 2 spielt daher in dieser Höhe ( $z < 70$  mm) keine Rolle für die Brenngeschwindigkeit und die Breite des Flammenkegels. Erst ab einer Höhe von  $z \approx 70$  mm brennt die Flamme in der Mischungsschicht von Ring 1 und 2 und damit dort wo  $0,85 < \phi < 1,25$  vorliegt.

Die stratifizierten Konfigurationen bilden vielmehr schmalere Flammenkegel aufgrund der bevorzugten Diffusion von  $H_2$ . In Abb. 4.13 ist ein Ausschnitt der Radialprofile in der Höhe  $z = 7$  mm erstellt, um den Effekt näher zu betrachten.



**Abbildung 4.13:**  $H_2$ -Massenbruch (oben) und  $C/H$ -Verhältnis (unten) über der radialen Position. Links: Messdaten vergrößert in der Höhe  $z = 7$  mm auf einer radialen Position nahe des Pilotrohrs (grau gepunktete Linie). Blau gestrichelte Linie: Messdaten MHF 7 räumlich auf  $T = 1000$  K geschoben und gemittelt. Rechts: theoretischer Verlauf über die Flammenfront aus einer 1-D-Rechnung. Numerische Daten sind zur besseren Vergleichbarkeit zentriert auf den Ort des maximalen Temperaturgradienten (grau gestrichelte Linie). Die Randbedingungen dafür wurden so gewählt, dass das Flamelet die vorherrschenden Bedingungen in den MHF-Konfigurationen möglichst genau nachbildet: Gegenstrom: Frischgas  $\phi = 0,85$  bzw.  $1,25$  trifft auf verbranntes Gemisch des Pilots ( $\phi = 0,7$ , Randbedingungen aus den Messwerten auf der Symmetrielinie  $r = 0$  mm verwendet;  $a = 1000$  1/s; Cantera, Gri 3.0, mit eigener Diffusion für alle Spezies und Soret-Effekt (mcs), vgl. Kap. 2.4). Das initial eingestellte  $C/H$ -Verhältnis im Frischgas beträgt 0,222.

In MHF 7 und 8 tritt eine stärkere Entmischung auf, die durch die präferentielle Diffusion von  $H_2$  zur Brennerachse hin (in Richtung niedrigerer  $H_2$ -Konzentrationen) verursacht wird. Sie ist besonders ausgeprägt in Richtung des verbrannten Gemisches des Pilotbrenners (vgl. der steile räumliche Gradient von  $H_2$  als Triebkraft für die Diffusion in Richtung kleinerer Radien: Abbildung 4.13 oben links – bei  $r = 8,4$  mm). Die Favre-Mittelung verschmiert den Maximalwert des  $H_2$ -Massenbruchs, der in den 1-D-Rechnungen (Abb. 4.13, oben rechts, bei  $r \approx 9$  mm) deutlich hervortritt. Das geschieht, da die Flammenfront in den MHF räumlich nicht stationär steht. Das Maximum des  $H_2$ -Massenbruchs ist auch in den MHF vorhanden: Die blau gestrichelte Linie in Abb. 4.13 (oben links) repräsentiert die Messdaten von MHF 7, die beispielhaft vor der Mittelung auf die räumliche Koor-

ordinate  $r^*$  bei  $T = 1000\text{ K}$  geschoben wurden. Das heißt, die Flammenfront befindet sich in allen Einzelschüssen, die in ihre Berechnung eingehen, an derselben virtuellen Position  $r^* = 9\text{ mm}$ . Hier ist nun auch deutlich das Maximum von  $\text{H}_2$  in den Messdaten zu erkennen. Die Struktur der 1-D-Flamme einschließlich der präferentiellen Diffusion wird in der turbulenten Konfiguration MHF 7 eindeutig wiedergegeben.

In größeren axialen Höhen ( $z = 15\text{ mm}$  und  $z = 30\text{ mm}$ ) ist in Abb. 4.12 der mittlere Ort der Reaktionszone an den lokalen Maxima des  $\text{H}_2$ -Massenbruches zu erkennen (z. B. bei  $r = 11,3\text{ mm}$ ,  $z = 30\text{ mm}$ , roter/blauer Graph). Das lokale Maximum des  $\text{H}_2$ -Massenbruchs ist hier deutlich höher als im einströmenden Brennstoff-Luft-Gemisch und so hoch, dass es trotz verschmierender Favre-Mittelung sichtbar ist.

Durch die Diffusion des  $\text{H}_2$  weg vom lokalen Maximum sinkt der Anteil an  $\text{H}_2$  im Brennstoff und beträgt nicht mehr 20 Vol.-%, wie initial eingestellt, sondern geht auf einstellige Werte zurück (nicht gezeigt). Eine geeignete Möglichkeit der Betrachtung der präferentiellen Diffusion ergibt sich über die Darstellung des C/H-Verhältnisses, d. h. des Verhältnisses der Anzahl der chemisch gebundenen Kohlenstoffatome zur Anzahl der Wasserstoffatome. In Abb. 4.13 (unten links) ist das gemittelte C/H-Verhältnis in der Höhe von  $z = 7\text{ mm}$  im Bereich des brennenden Rings 1 gezeigt und kennzeichnet die Stelle, an der verstärkt präferentielle Diffusion von  $\text{H}_2$  (H-Spezies) auftritt: Das C/H-Verhältnis besitzt hier ein lokales Maximum von 0,247 bei MHF 8 an einer Position leicht außerhalb des Pilotrohrs.

In Abb. 4.13 (rechts) ist eine laminare 1-D-Gegenstrom-Rechnung ( $a = 1000\text{ 1/s}$ ) gezeigt. Die Randbedingungen wurden so gesetzt, dass der erste Strom dem unverbrannten Gemisch aus Ring 1 entspricht ( $\phi = 0,85$  bzw. 1,25) und der zweite dem Gemisch des verbrannten Pilotgases. Die Skalaraten für das Gemisch des verbrannten Pilotgases wurden aus den Messdaten auf der Mittellinie des Brenners ( $r = 0\text{ mm}$  und  $z = 7\text{ mm}$ ) ausgelesen und betragen unter anderem  $\phi \approx 0,71$  und  $T \approx 1860\text{ K}$ . Aus den laminaren 1-D-Rechnungen (vgl. Abbildung 4.13, unten rechts) wird das stärkere Schwingen des C/H-Verhältnisses bei brennstoffreicherem Gemisch in Ring 1 erwartet. Der Verlauf der Werte an den Extremstellen zeigt eine gute Übereinstimmung mit den Messdaten aus den turbulenten Konfigurationen MHF 5/6 und 7/8.

Der, von rechts nach links (d. h. von unverbrannt nach verbrannt) betrachtet, erste Abfall des C/H-Verhältnisses in den 1-D-Rechnungen (bei ca.  $r = 9,2\text{ mm}$ ), ist in den gemittelten Messdaten nicht zu sehen. Er findet direkt am Ort der Reaktion statt und ist in Abb. 4.13 (unten rechts) als steilster Temperaturgradient - einem Marker für die Flammenfront - mit einer vertikalen gestrichelten Linie dargestellt. Dieser erste Abfall ist assoziiert mit präferentieller Diffusion in der Flammenfront. Das Überspringen links davon tritt an der Stelle auf, an der teilweise verbranntes und unverbranntes Gemisch aus Ring 1 auf das vollständig ausgebrannte Abgas des Piloten treffen. Simulationen mit niedrigeren Streckungsraten als der gewählten ( $a = 1000\text{ 1/s}$ ) lassen diese beiden Zonen räumlich auseinanderwandern (nicht gezeigt). Die mittlere Flammenfront befindet sich in den Fällen MHF 5/6 bei  $r \approx 9,5\text{ mm}$  und bei MHF 7/8 bei  $r \approx 9,1\text{ mm}$  (vgl. Abb. 4.7), jedoch in ähnlicher Nähe wie in den gezeigten Rechnungen.

Wie für den  $\text{H}_2$ -Massenbruch (Abb. 4.13 – oben links) repräsentiert die blau gestrichelte Linie in Abb. 4.13 (unten links) die Messdaten von MHF 7, die beispielhaft vor der Mittelung auf die räumliche Koordinate  $r^*$  bei  $T = 1000\text{ K}$  geschoben wurden. Hier ist nun auch der erste Abfall (von rechts nach links) des C/H-Verhältnisses zu erkennen. Es wird deshalb angenommen, dass der Effekt durch eine Kombination der geringen räumlichen Ausdehnung des lokalen Minimums und der räumlichen Verschmierung in den Favre-gemittelten Werten nicht mehr sichtbar ist.



Fazit:

Die Betrachtung des C/H-Verhältnisses am Übergang des Gemisches von Pilot zu Ring 1 erlaubt Rückschlüsse auf präferentielle Diffusion einzelner Spezies. Generell geben die laminaren 1-D-Rechnungen den Verlauf des C/H-Verhältnisses hier sehr gut wieder. Sie bestätigen die These der Entmischung durch präferentielle Diffusion des  $H_2$ .  $H_2$  diffundiert präferentiell von der Stelle der Reaktion weg, hauptsächlich in das verbrannte Gemisch des Pilotgases. Damit ändert sich die Gemischzusammensetzung und die Brenngeschwindigkeit ist lokal reduziert. Die Auswirkung der präferentiellen Diffusion ist in den stratifizierten Konfigurationen mit einem Äquivalenzverhältnis von  $\phi = 1,25$  in Ring 1 (MHF 7 und 8) stärker ausgeprägt, weil hier mehr  $H_2$ -Moleküle, die diffundieren können, vorhanden sind. Die Flamme stabilisiert sich dadurch in den stratifizierten Fällen axial höher und bei kleineren Radien als in den vorgemischten Fällen MHF 5 und 6. Die präferentielle Diffusion von  $H_2$  prägt makroskopisch das Erscheinungsbild der Flammen. Sie beeinflusst lokal die Stöchiometrie und hat damit erhebliche Auswirkungen auf die lokale Wärmeabfuhr.

### Konvektion komprimiert die Flamme

In MHF 6 und 8 liegt die Ausströmgeschwindigkeit von Ring 2 bei 15 m/s und damit um 50 % höher als in Ring 1. Durch die höhere konvektive Geschwindigkeit in Ring 2 hat das austretende Gas einen höheren Impuls, der die thermische Expansion in radiale Richtung verringert. Dies sorgt dafür, dass MHF 6 und 8 in allen Höhen dichter an der Mittellinie brennen als die Vergleichsfälle MHF 5 und 7 (vgl. Kap. 4.2.1). Das ist in den mittleren Temperaturprofilen (Abb. 4.7) zu erkennen und verdeutlicht, dass die Konvektion den größten Einfluss auf das Erscheinungsbild der Flammen hat. Scherung in der Flamme (wie bei MHF 6 und 8) erhöht die Turbulenz und damit die Brenngeschwindigkeit. Dieser Effekt ist für das Erscheinungsbild offenbar untergeordnet.

Generell ergibt sich das Erscheinungsbild der Flamme über dem stratifizierten Brenner (vgl. Abb. 3.3 in Kap. 3.2.1) maßgeblich durch folgende Effekte. Sie sind voneinander abhängig und hier relativ betrachtet.

- Ausströmgeschwindigkeit:
  - ⇒ **Flamme** wird mit größerer Ausströmgeschwindigkeit in Ring 2 (ab ca.  $z = 60$  mm) **schmäler** und brennt dichter an der Mittellinie.
- Brenngeschwindigkeit:
  - ⇒ Eine Stöchiometrie näher an der maximalen laminaren Brenngeschwindigkeit (bei  $\phi \approx 1,06$ ; vgl. Abb. 2.8 links in Kap. 2.4) führt dazu, dass die Flamme in geringerer Höhe über dem Pilotrohr brennt; der **Flammenkegel** wird **breiter**.
  - ⇒ Einmischung von Luft verdünnt das Brennstoff-Luft-Gemisch. Die lokale Brenngeschwindigkeit sinkt. Der Flammenkegel wird schmaler.
- Turbulenz:
  - ⇒ Durch Scherung, d. h. eine große Differenz in den Ausströmgeschwindigkeiten zwischen Ring 1 und 2, steigt der Turbulenzgrad. Die Chemie-Turbulenz-Interaktion steigt, und damit ist die Brenngeschwindigkeit erhöht - der **Flammenkegel** wird **breiter**. Ist die Turbulenz zu stark, findet lokales Verlöschen statt - der **Flammenkegel** wird **schmäler** (vgl. Abb. 2.5 in Kap. 2.3).

⇒ Aus [86] kann aus der Vermessung der Geschwindigkeitsfelder ähnlicher Flammenkonfigurationen am gleichen Brenner abgeschätzt werden, dass die Fluktuationen der Radialgeschwindigkeit bei MHF 5-8 im Bereich von  $1,5 \text{ m/s} < v' < 2,5 \text{ m/s}$  liegen. In diesem Bereich steigt für das vorliegende Gemisch die turbulente Brenngeschwindigkeit bei zunehmender Turbulenz [53].

### Rückschlüsse aus den Temperaturprofilen (Abb. 4.7)

Ab einer Höhe von  $z = 15 \text{ mm}$  erreichen die mittleren Temperaturen, in der Reaktionszone von Ring 1, ein höheres Niveau als die Abgase des Piloten, denn die Mischung in Ring 1 ist in allen MHF brennstoffreicher als im Pilotgas.

Beginnend bei einer Höhe von  $z = 45 \text{ mm}$  zeigt sich bei  $r \approx 50 \text{ mm}$  ein zweites lokales Maximum der mittleren Temperatur. Es wird durch Flammenäste verursacht, die stromaufwärts schlagen und dabei Heißgas in niedrige Höhen befördern. Das Phänomen ist konsistent in den zeitlich gemittelten Chemolumineszenzaufnahmen (Abb. 4.5) und den Flammenwinkeln, bestimmt aus den gekreuzten OH-PLIF-Aufnahmen, zu sehen (vgl. Kap. 4.2.3). Die Tendenz, rückschlagende Flammenäste zu bilden, sinkt von Konfiguration MHF 5  $\rightarrow$  6  $\rightarrow$  7  $\rightarrow$  8.

### Lage der Reaktionszone (Abb. 4.7 und 4.10)

Für die Konditionierung der Messdaten (vgl. Kap. 4.3) ist die mittlere Lage der Reaktionszone in den einzelnen Flammen interessant. Die Bestimmung des sog. *flame brush* kann anhand verschiedener Parameter vorgenommen werden. In [98] wird die Lage der maximalen Fluktuationen der Temperatur verwendet, um den *flame brush* zu bestimmen. Als weiteres Kriterium bietet sich die Lage des maximalen CO-Massenbruchs an, da aus 1-D-Flamelet-Rechnungen bekannt ist, dass sein Maximum sehr nahe am Ort der größten Wärmefreisetzung liegt (vgl. Abb. 2.8 rechts in Kap. 2.4).

Die Definition des *flame brush* nach [98] bietet den Vorteil, dass sie unabhängig von den Absolutwerten des CO-Massenbruchs ist. Das ist besonders bei den stratifizierten Flammen MHF 7 und 8 bedeutend, da  $Y_{\text{CO,max}, \phi=1,25}/Y_{\text{CO,max}, \phi=0,45} > 4$ . Die Fluktuationen der Temperatur alleine zu betrachten, kann dagegen irreführend sein. Sie haben auch an der Stelle ein lokales Maximum, an der heißes Abgas mit Sekundärluft mischt (z. B.  $T''_{\text{rms}}$  bei  $z = 45 \text{ mm}$  und  $r = 50 \text{ mm}$  oder bei  $z = 100 \text{ mm}$  und  $r > 80 \text{ mm}$ ). In dieser Arbeit wurde für die vorgemischten Flammen MHF 5 und 6 die maximale Amplitude des CO-Massenbruchs als Marker für die mittlere Reaktionszone verwendet. Für die stratifizierten Fälle MHF 7 und 8 war  $T''_{\text{rms,max}}$  das geeignete Kriterium. Auf die genaue Lage der Reaktionszone wird in Kap. 4.3.1 eingegangen.

### Lage der Mischungsschicht zwischen Ring 1 und Ring 2 (Abb. 4.8)

Die Profile des mittleren Äquivalenzverhältnisses ( $\tilde{\phi}$ ) und der Fluktuationen ( $\phi''_{\text{rms}}$ ) geben Aufschluss, an welcher Stelle sich in den stratifizierten Fällen MHF 7 und 8 die Mischungsschicht zwischen Ring 1 und 2 befindet. Sie liegt bei  $z = 7 \text{ mm}$  direkt über dem Rohr von Ring 1. Verursacht durch die thermische Expansion des brennenden Gemisches aus Ring 1, wandert die Mischungsschicht in größeren Höhen zu größeren Radien. Auch hier ist die große Auswirkung der hohen Geschwindigkeit in Ring 2 bei MHF 8 zu sehen: Der Abstand der lokalen Maxima von ( $\phi''_{\text{rms}}$ ) zwischen MHF 7 und MHF 8 wird ausgehend von  $z = 45 \text{ mm}$  immer größer, weil der größere Impuls des Gasstroms aus Ring 2 die Flamme

zusammendrückt. Erst in einer Höhe von ca.  $z = 70$  mm erreicht die Mischungsschicht den brennenden Bereich in der Flamme. In diesem Bereich, in dem sich der Verlauf der Mischungsschicht und des *flame brush* schneiden, treten besonders viele Flammenereignisse auf, in denen die Flammenfront durch ein stratifiziertes Gemisch propagiert. Hier wird erwartet, dass die Zugabe von  $H_2$  die erheblichsten Auswirkungen auf den Ablauf der Verbrennung hat und die Interaktion zwischen Chemie und Turbulenz am bedeutendsten ist (vgl. Kap. 4.3).

Die Magnitude der maximalen Fluktuationen von  $\phi$  sind in MHF 7 in großen axialen Höhen ca. 10 % höher als in MHF 8. Das lässt darauf schließen, dass die Scherung im Vergleichsfall MHF 8 die Mischung verstärkt und den Gradienten von  $\phi$  seit Austritt aus den Brennerrohren stärker verschmiert hat.

Der Verlauf des Massenbruchs von  $H_2$  (Abb. 4.12) zeigt in den niedrigen axialen Ebenen ( $z < 30$  mm) einen flacheren Gradienten zwischen Ring 1 und 2 als bei  $CH_4$  (Abb. 4.11): Auch bei niedrigen Temperaturen diffundiert  $H_2$  schneller in das magere Gemisch von Ring 2. Das kleine lokale Maximum des  $H_2$ -Massenbruchs bei  $z = 15$  mm und  $r \approx 10$  mm zeigt, an welcher Stelle hier das Gemisch verbrennt: In der Flamme wird  $H_2$  bei der Reaktion des  $CH_4$ -Moleküls gebildet.

### Grad des Brennstoffausbrandes und Freisetzung der thermischen Energie

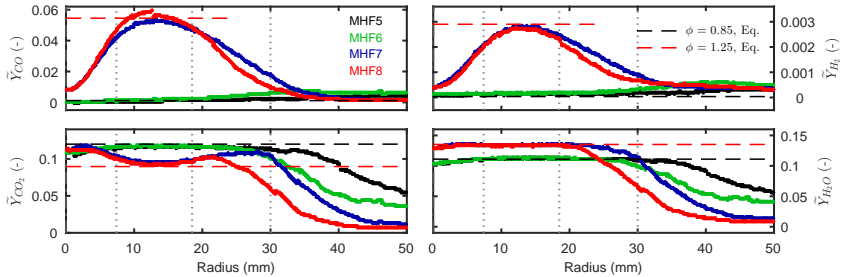
In der höchsten vermessenen Ebene  $z = 100$  mm ist die vorgemischte Konfiguration MHF 5 fast vollständig ausgebrannt: Die chemisch gebundene Energie ist in thermische umgesetzt. Der Verlauf der Skalaraten (vgl. Abb. 4.7 f.) zeigt, dass in MHF 5 kein  $CH_4$  und  $H_2$  mehr vorhanden ist. Das energiereiche Zwischenprodukt CO liegt nur in geringen Anteilen vor. Bei MHF 6, 7 und 8 sind noch größere Massenanteile von  $CH_4$  vorhanden. Das deckt sich mit den Aufnahmen der (räumlich aufintegrierten) sichtbaren Chemolumineszenz der Flammen (vgl. Abb. 4.5 und Kap. 4.2.1).

Es ist davon auszugehen, dass in den stratifizierten Konfigurationen erhebliche Anteile des Brennstoffs nicht reagieren, da sich notwendiges  $O_2$  (vgl. Abb. 4.9) erst in großen Höhen zu den Edukten und Zwischenprodukten mischt. Dort sind die Temperaturen für eine vollständige Reaktion bereits zu niedrig. Durch den unvollständigen Ausbrand liegt die thermische Leistung von MHF 7 und 8 wohl deutlich unter der nominellen von 61 kW und 73 kW. Wieviel thermische Leistung bis  $z = 100$  mm freigesetzt wurde, kann aus den Skalaraten nicht bestimmt werden, da das Geschwindigkeitsfeld unbekannt ist. Es ist zur Quantifizierung notwendig. In Höhen ab  $z = 100$  mm können erst dadurch, dass  $O_2$  von außen zu den brennstoffreichen Bereichen bei kleinen Radien zumischt, die Edukte und Zwischenprodukte reagieren. Bei  $z = 100$  mm liegt bei MHF 7 und 8 bei Radien von  $r < 20$  mm kein  $O_2$  vor. Die globale Reaktionsgeschwindigkeit ist hier durch Mischung limitiert.

Am Massenbruch von  $H_2$  und CO wird deutlich, dass bei  $z = 100$  mm in den stratifizierten Konfigurationen MHF 7 und 8 noch bedeutende Energiemengen chemisch gebunden sind. Die elementare Reaktion von CO ( $CO + OH \rightleftharpoons CO_2 + H$ ) leistet einen wesentlichen Beitrag zur Wärmefreisetzung [103]. Die beiden Zwischenprodukte konkurrieren um  $O_2$  zur Weiterreaktion. Am Verlauf des Massenbruchs von  $O_2$  lässt sich beobachten, dass die erhöhte Mischung in MHF 8 – durch die 50 % höhere Geschwindigkeit in Ring 2 – im Vergleich zu MHF 7 die Zumischung von Sauerstoff verbessert:  $O_2$  steht bereits bei ca. 5 mm kleineren Radien wieder zur Verfügung (vgl. Abb. 4.9, oben links). Dieser Effekt ist schwer zu quantifizieren, da die höhere konvektive Geschwindigkeit in Ring 2 allein

dafür sorgt, dass der Flammenkegel schmäler ist (vgl. oben). Die bessere Mischung durch Scherung kann den überwiegenden Einfluss der Stratifizierung zwischen Ring 1 und 2 nicht kompensieren.

In Abb. 4.14 werden die Messwerte der Massenbrüche in einer Höhe von  $z = 100$  mm laminaren 1-D-Rechnungen gegenübergestellt. Die Rechnungen wurden mit einem Äquivalenzverhältnis von  $\phi = 0,85$  – entsprechend MHF 5 und 6 – sowie mit  $\phi = 1,25$  als Vergleichsfall von MHF 7 und 8 initialisiert. Die gewählte Streckungsrate beträgt  $a = 1000$  1/s und ist in Anlehnung an [38] abgeschätzt. Der Bereich ungefähr in der Mitte des Rings 1 bei  $r = 12,5$  mm ist dadurch gekennzeichnet, dass wenig Einfluss vom benachbarten mageren Gemisch des Piloten (bei kleineren Radien) oder Gemisch des Rings 2 (bei größeren Radien) herrscht. Dementsprechend sind die Massenbrüche aller Spezies (gezeigt sind  $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$ ) hier nahezu identisch zur jeweiligen laminaren Rechnung.  $\text{CO}_2$  zeigt in MHF 7 und 8 an dieser Stelle niedrigere Konzentrationen als in MHF 5 und 6. Das spiegelt die Konkurrenz der Zwischenprodukte um  $\text{O}_2$  wider und ist somit erwartet. Der Ablauf der chemischen Reaktion ist hier unabhängig von der vorherrschenden Turbulenz und Stratifizierung.

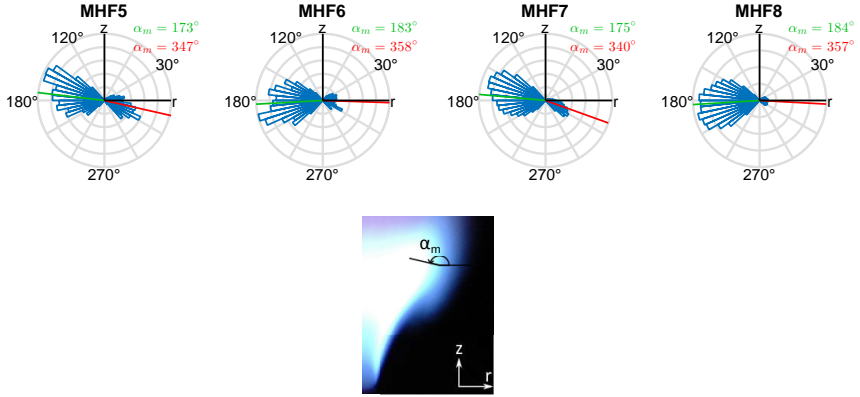


**Abbildung 4.14:** Vergrößerter Ausschnitt der Favre-Mittelwerte der Massenbrüche von  $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  in der Höhe  $z = 100$  mm über dem Brenner für alle Flammen MHF 5-8. Horizontale gestrichelte Linien: Gleichgewichtskonzentration (engl. *equilibrium*) aus laminaren 1-D-Gegenstromrechnung ( $a = 1000$  1/s) für  $\phi = 0,85$  (schwarz) und  $\phi = 1,25$  (rot). Vertikale gepunktete Linien: radiale Positionen der Ringe des Brenners.

### 4.2.3 Orientierung der Flammenfront

Aus den Aufnahmen der gekreuzten OH-PLIF-Laserlichtschnitte, kann der Flammennormalenvektor berechnet werden (vgl. Kap. 3.1.2). Er ist definiert als der Vektor, der am Schnittpunkt der Flammenfront mit dem Raman-Rayleigh-Laser orthogonal auf der Flammenfront steht und in Richtung „verbrannt“ zeigt (vgl. Abb. 3.30 in Kap. 3.4.4). Auf den horizontalen Winkel zwischen Flammennormalenvektor und Laserachse wird hier nicht näher eingegangen, da er bei allen MHF, wie erwartet, sehr ähnlich verteilt ist ( $180^\circ$  bzw.  $0^\circ$ ).

In Abb. 4.15 oben ist die Häufigkeitsverteilung des vertikalen Winkels ( $\alpha_m$ ) des Flammennormalenvektors zur radialen Koordinate für alle Konfigurationen MHF 5-8 angegeben. Der Winkel ( $\alpha_m$ ) liegt in der Ebene, die durch die vertikale Achse  $z$  und die radiale Koordinate  $r$  aufgespannt wird (vgl. Abb. 4.15 unten). Er wurde an der Messposition der



**Abbildung 4.15:** Oben: Häufigkeitsverteilung des vertikalen Winkels der Flammennormale zur Laserachse. Gezeigt sind die normierten Werte für die Flammen MHF 5-8. Die Mittelwerte der Winkel ( $\alpha_m$ ) der bimodalen Verteilung sind jeweils in rot (Flamme brennt von außen nach innen) und grün (Flamme brennt von innen nach außen) angegeben. Unten: Exemplarische Darstellung der Lage des Flammennormalenvektors an einer zeitlich gemittelten Chemolumineszenzaufnahme (vgl. Abb. 4.5).

hochaufgelösten Daten ( $z = 75 \text{ mm}$ , vgl. Tab. 4.2 in Kap. 4.3.1) ausgewertet. Seine Verteilung ist in allen Flammen bimodal. Die grün markierten Winkel treten deutlich häufiger auf. Sie markieren den Fall, dass die Flamme von innen nach außen brennt. Ihr Mittelwert liegt um  $180^\circ$  und bei MHF 6 und 8 bei größeren Winkeln als bei MHF 5 und 7. Das ist durch die schmalere Form der Flammen mit höherer Geschwindigkeit in Ring 2 verursacht (vgl. Kap. 4.2). Der rot markierte Winkel beschreibt den Mittelwert der Einzelereignisse, bei denen die Flamme von außen nach innen brennt. Das geschieht, wenn Flammenäste von stromabwärts nach stromaufwärts schlagen. Hier liegt bei kleineren Radien unverbranntes, bei größeren Radien verbranntes Gemisch vor. Der Flammenrückschlag tritt an der gewählten Messposition der Flammen deutlich häufiger bei den Konfigurationen ohne Scherung (MHF 5 und 7) auf.

## Zusammenfassung

In den vorangegangenen Abschnitten wurde anhand der Favre-Mittelwerte und RMS der Fluktuationen die vier Flammenkonfigurationen MHF 5-8 im physikalischen Raum charakterisiert. Ein wichtiger Einflussfaktor auf die Flammenform ist die größere Geschwindigkeit in Ring 2 ( $v = 15 \text{ m/s}$ ) in den Fällen MHF 6 und 8. Die konvektive Geschwindigkeit lässt den Flammenkegel schmäler werden und überwiegt Effekte der Turbulenz auf die Brenngeschwindigkeit. Dementsprechend ist die Orientierung der Flammenfront am Schnittpunkt von Mischungsschicht und *flame brush* in MHF 6 und 8 häufiger parallel zur  $z$ -Achse (d. h. axiale Richtung des Brenners). Die vorgemischten Fälle MHF 5 und 6 stabilisieren sich tiefer und bei größeren Radien als die stratifzierten Fälle MHF 7 und 8. Das ist verursacht durch die präferentielle Diffusion von  $\text{H}_2$ . Sie findet erheblich vom Gemisch in Ring 1 in Richtung des verbrannten Piloten statt. Hier ändert sich dadurch die Gemischzusammensetzung, und die Brenngeschwindigkeit wird reduziert. Der Effekt ist bei den stratifzierten Fällen ausgeprägter, bedingt durch die höheren  $\text{H}_2$ -Konzentrationen in Ring 1. Die präferentielle Diffusion von  $\text{H}_2$  prägt makroskopisch das Erscheinungsbild der

Flammen. Sie beeinflusst lokal die Stöchiometrie und hat damit erhebliche Auswirkungen auf die lokale Wärmefreisetzung. In der höchsten vermessenen Ebene ( $z = 100$  mm) sind die vorgemischten Konfigurationen MHF 5 und 6 weitgehend ausreagiert. Bei MHF 7 und 8 ist noch ein erheblicher Teil der chemischen Energie in  $H_2$  und dem Zwischenprodukt CO gespeichert.

Mit der dargelegten Charakterisierung der Flammen ist die Voraussetzung erfüllt, um die Lage der Mischungsschicht zwischen Ring 1 und 2 und des *flame brush* zu bestimmen. So können im folgenden Abschnitt relevante Punkte zur Untersuchung der Mikrostruktur der Flammen festgelegt werden. Zudem stehen umfangreiche Daten zur Validierung numerischer Simulationen der MHFs zur Verfügung. Abschließend kann bestätigt werden, dass die Skaldaten, die Flammennormalenvektoren und die Chemolumineszenzaufnahmen aller Flammen in sich konsistent sind.

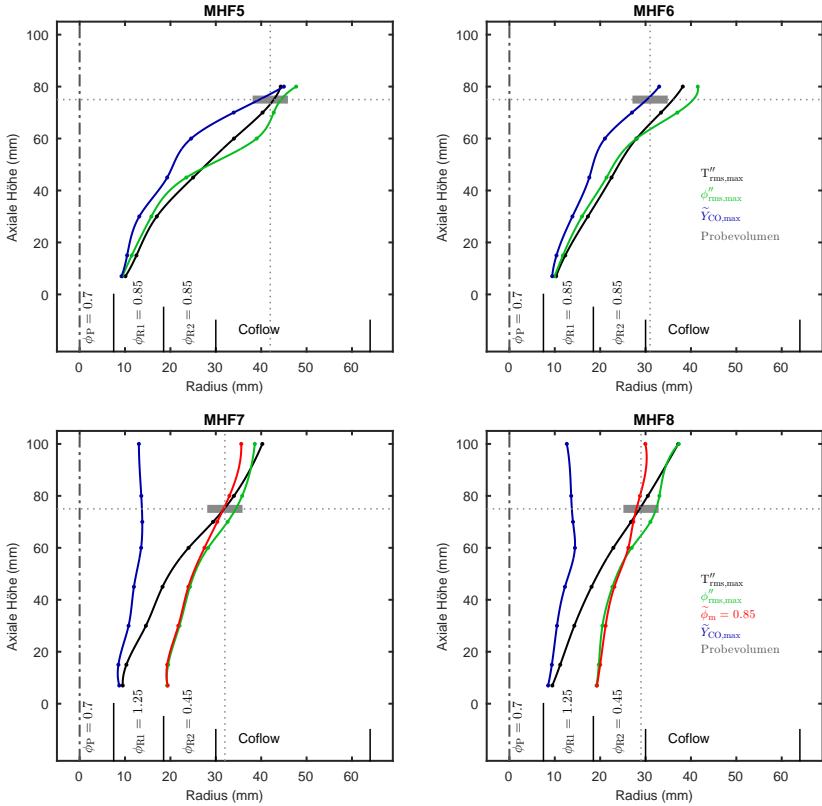
### 4.3 Konditionierung der hochaufgelösten Daten aus MHF 5-8

Im diesem Unterkapitel wird der Einfluss des lokalen Äquivalenzverhältnisses und der Stratifizierung auf die Mikrostruktur der Flamme besprochen. Dazu werden zunächst diejenigen Messpositionen in den Flammen MHF 5-8 definiert, an denen der größte Einfluss der  $H_2$ -Kodotierung und Stratifizierung auf die Chemie-Turbulenz-Interaktion erwartet wurde. Dies geschieht am Schnittpunkt der mittleren Flammenposition (*flame brush*) mit der Mischungsschicht (vgl. [96]). Es wird eine sehr hohe räumliche Auflösung (von ca.  $60\text{ }\mu\text{m}$ ) durch Überabtastung (engl. *oversampling*) und anschließendes *wavelet denosing* (Entrauschen, vgl. Kap. 3.4.2) erreicht. Durch die hohe Anzahl an aufgenommenen Einzelereignissen (40.000) ist es auch nach starker Konditionierung möglich, signifikante Ergebnisse zu erzielen. Die Konditionierung erfolgt erst auf das Äquivalenzverhältnis in der Flammenfront und anschließend, doppelt, auf das Äquivalenzverhältnis sowie die lokale Stratifizierung. Ein Vergleich der MHF-Konfigurationen gegeneinander und gegen laminare 1-D-Rechnungen als Basis zeigen die Auswirkungen der Stratifizierung, insbesondere auf  $H_2$ .

#### 4.3.1 Bestimmung der Messposition für die hochaufgelösten Daten

Der größte Einfluss der  $H_2$ -Kodotierung und der Stratifizierung auf die Chemie-Turbulenz-Interaktion wurde am Schnittpunkt von mittlerer Flammenposition (*flame brush*) und Mischungsschicht erwartet ([96]). Zur Identifikation dieser Stelle wurden die in Vorversuchen generierten mittleren Radialprofile herangezogen. Als geeignet erwies sich die Methode, die mittlere Flammenposition anhand des Maximums der  $T''_{\text{rms}}$  zwischen Ringspalt 1 und 2 zunächst für die stratifizierten Fälle MHF 7 und 8 zu bestimmen (vgl. Abb. 4.7). Anschließend wurde an diesen radialen Positionen das mittlere Äquivalenzverhältnis  $\tilde{\phi}$  (vgl. Abb. 4.8) ausgelesen und zwischen den Diskretisierungsstufen, entsprechend den axialen Höhen  $z$ , linear interpoliert, um den Wert  $\tilde{\phi}_m = (\tilde{\phi}_{R1} - \tilde{\phi}_{R2})/2 = 0,85$  zu finden. Die gefundenen Höhen befanden sich bei MHF 7 und 8 bei  $z = 75$  mm über dem Pilotrohr. Die radialen Messpositionen wurden durch lineare Interpolation der Maxima der  $T''_{\text{rms}}$  zwischen der Messebene darüber und darunter bestimmt. Sie lagen bei  $r = 32$  mm bei MHF 7 und bei  $r = 29$  mm bei MHF 8. Ausgehend von diesen Positionen wurde für die

korrespondierenden vorgemischten Fälle MHF 5 und 6 die radiale Messposition in der gleichen Höhe ( $z = 75$  mm) bei den Maxima der CO-Massenbrüche (vgl. Abb. 4.10) determiniert. Bei MHF 5 und 6 erwies sich  $T''_{\text{rms}}$  als ein weniger geeigneter Marker für den *flame brush*, da die Maximalwerte hier zum Teil in der Mischungsschicht mit der Sekundärluft auftraten. Aufgrund der niedrigen Absolutwerte des CO-Massenbruchs war aber auch die Bestimmung über diesen Skalar fehlerbehaftet. In Abb. 4.16 sind die Positionen in den Flammen dargestellt, in denen hochaufgelöst gemessen wurde. In MHF 5 und 6 waren die Messvolumen, nachträglich betrachtet, nicht exakt mittig über  $\tilde{Y}_{\text{CO,max}}$  positioniert (ca. 1 mm bzw. 0,5 mm daneben). Da jedoch über eine Länge von 6 mm Daten aufgenommen wurden, bleibt die geringfügige Fehlpositionierung ohne nachteilige Auswirkungen



**Abbildung 4.16:** Räumliche Lage des 6 mm langen Probevolumens für die hochaufgelösten Daten von MHF 5-8 bestimmt aus den Schnittpunkten des *flame brush*  $T''_{\text{rms}}$  und der Mischungsschicht bei  $\phi_m = (\phi_{R1} - \phi_{R2})/2 = 0.85$  für die Flammen MHF 7 und 8 sowie aus dem Schnittpunkt  $\tilde{Y}_{\text{CO,max}}$  mit der Höhenlinie  $z = 75$  mm für MHF 5 und 6. Die Darstellung über alle Höhen  $z$  wurde mittels Spline-Interpolation erstellt. Zur Verdeutlichung der Lage des Messvolumens (grauer Balken) ist es mit einem gepunkteten Zielkreuz markiert.

für das Messergebnis. Die gefundenen Positionen sind Tab. 4.2 zu entnehmen. An ihnen wurden für MHF 5 und 6 jeweils 10.000 und für MHF 7 und 8 jeweils 40.000 Einzelschüsse aufgenommen.

**Tabelle 4.2:** Gefundene Messpositionen für die hochaufgelösten Daten.

	MHF 5	MHF 6	MHF 7	MHF 8
axiale Position (mm)			75	
radiale Position (mm)	42	31	32	29

### 4.3.2 Konditionierung auf das Äquivalenzverhältnis

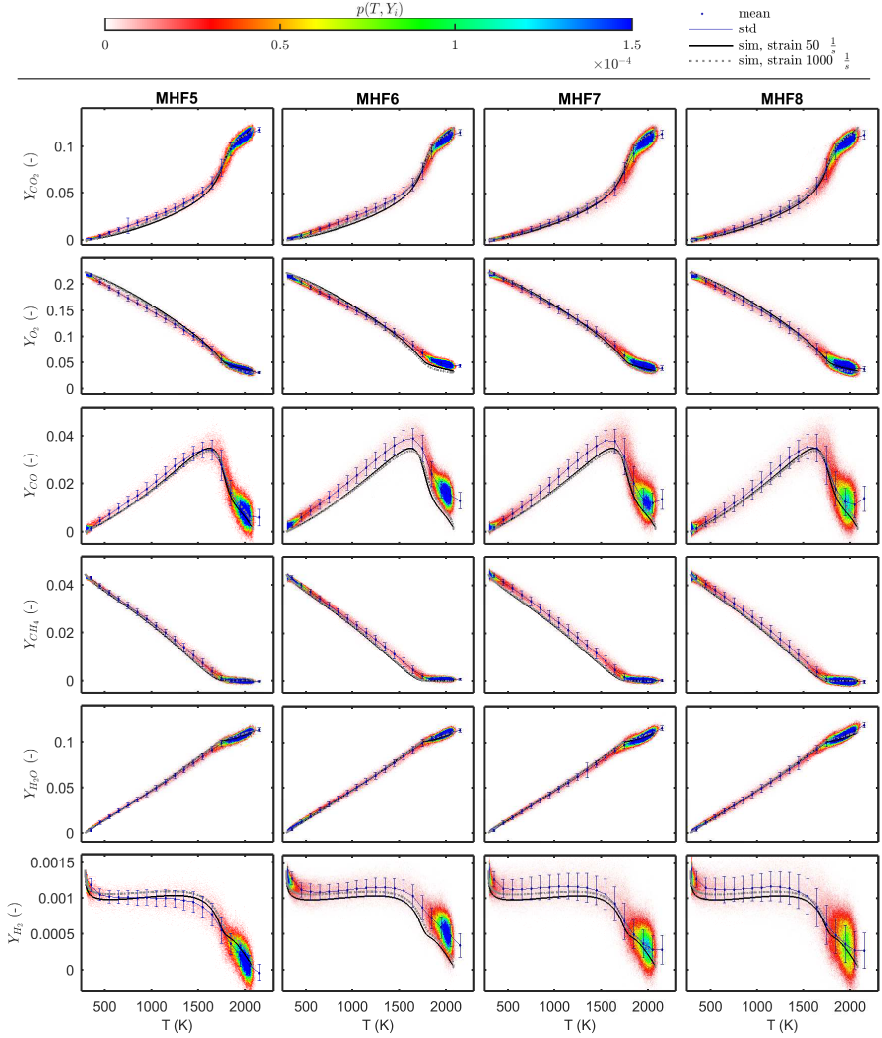
#### Konditionierung auf $\phi = 0,85$

In Abb. 4.17 sind die Massenbrüche aller gemessenen Spezies im Temperatur-Zustandsraum gezeigt. Die Daten sind, in Anlehnung an [38], auf das lokale Äquivalenzverhältnis konditioniert, d. h. nur Datenpunkte mit einem lokalen  $\phi = 0,85 \pm 2,5\%$  gehen in die Darstellung mit ein. Alle Punkte, in denen eine momentane Temperatur im Intervall von 100 K um  $T_{\text{bin}}$  (*bin*, engl. Behälter) herrschte, wurden zur Mittelwertbildung (blaue Punkte) herangezogen. Die vertikalen Balken repräsentieren die Streuung der Messwerte und entsprechen der Standardabweichung des Messpunktes innerhalb des Temperaturintervalls. Die Mittelwerte liegen auf dem jeweiligen Schwerpunkt der Punktwolke im Temperaturintervall. Sie erleichtern den Vergleich zu den 1-D-Rechnungen (schwarz bzw. grau gepunktet). In die gesamte Punktwolke von  $\phi = 0,85 \pm 2,5\%$  beispielsweise gehen 600.000 Einzelpunkte ein, im Temperaturintervall von  $1100 \text{ K} < T < 1200 \text{ K}$  immer noch ca. 8.000 Einzelmesspunkte. Damit ist sichergestellt, dass eine ausreichend große Datenbasis vorhanden ist, um Schlussfolgerungen zu ziehen. Zur Beurteilung der Mittelwertschätzung: Der gemessene Mittelwert (blauer Punkt) beträgt bei MHF 8 hier  $Y_{\text{H}_2} = 1,17 \cdot 10^{-3} \pm 4,5 \cdot 10^{-6}$  (95%). Der zweite Term repräsentiert dabei die Standardabweichung der Mittelwertschätzung. Der Abstand des Mittelwertes (blauer Punkt) zur gestreckten 1-D-Rechnung (grau gepunktete Linie) beträgt hier:  $\Delta Y_{\text{H}_2} = 75 \cdot 10^{-6}$ .

Bei Temperaturen um 300 K und 2000 K ist die Punktwolke im Streudiagramm am dichtesten (blaue Farbtöne in  $p(T, Y_i)$ ). Diese Bereiche entsprechen den Fällen: „Frischgas“ und „komplett verbranntes Gemisch“. Der interessante Bereich bei mittleren Temperaturen  $500 \text{ K} < T < 1500 \text{ K}$  (rote Farbtöne in  $p(T, Y_i)$ ) wird naturgemäß nur in der dünnen Flammenfront gemessen und liefert damit die wenigsten Punkte im Streudiagramm. Die laminaren 1-D-Rechnungen werden mit sehr geringer und großer Streckungsrate ( $a = 50 \text{ 1/s}$  und  $a = 1000 \text{ 1/s}$ ) gezeigt. Die Streckungsrate von  $a = 1000 \text{ 1/s}$  ist in Anlehnung an [38] und den Strömungsfeldmessungen ähnlicher Flammen [85] abgeschätzt. Ihr Verlauf ist für alle Flammen identisch, da bei  $\phi = 0,85$  initialisiert. Die stratifizierten Fälle MHF 7 und 8 liegen sehr nahe an den 1-D-Rechnungen, besonders für die Massenbrüche von  $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$ . Die CO-Massenbrüche liegen über dem gesamten Temperaturbereich geringfügig über den laminaren Flamelets. Ihre Mittelwerte steigen bei Temperaturen von  $T > 2100 \text{ K}$  wieder an. Dies liegt an der sehr geringen Anzahl der Messpunkte in diesem Bereich, die bei dieser geringen Konzentration leicht fehlerbehaftet sein können. Auch der  $\text{H}_2$ -Massenbruch liegt geringfügig über den 1-D-Rechnungen und hat eine größere Streubreite als bei den vorgemischten Fällen MHF 5 und 6.

Beim vorgemischten Fall MHF 6 liegen die Massenbrüche von  $\text{H}_2$  und CO im gesamten Temperaturbereich im Mittel um ca. eine halbe Standardabweichung höher als in der





**Abbildung 4.17:** Massenbruch der Spezies  $CO_2$ ,  $O_2$ ,  $CO$ ,  $CH_4$ ,  $H_2O$  und  $H_2$  im Temperatur-Zustandsraum für alle Flammen MHF 5-8. Konditionierung auf das Äquivalenzverhältnis  $\phi = 0,85 \pm 2,5\%$ . Die gemeinsame Wahrscheinlichkeitsdichte  $p(T, Y_i)$  von Temperatur und Massenbruch der jeweiligen Spezies ist farbkodiert (in Summe auf 1 normiert) und entspricht der Häufigkeit der Messwerte an dieser Stelle im Diagramm. Mittelwerte in einem 100-K-Intervall sind in blau gezeigt, vertikale Balken (Streuung der Messwerte) entsprechen der Standardabweichung. Die schwarze durchgezogene Linie entspricht der quasiungestreckten laminaren 1-D-Rechnung, die grau gepunktete Linie der gestreckten ( $a = 1000 \text{ 1/s}$ ) für das mittlere Äquivalenzverhältnis von  $\phi = 0,85$ .

1-D-Rechnung und höher als beim Vergleichsfall MHF 5. Korrespondierend dazu ist  $O_2$  hier in geringerer Konzentration vorhanden. Dies wird auf kleine Änderungen bei den Rahmenbedingungen der Auswertung zurückgeführt und liegt im Rahmen der Akkuratheit der Messtechnik (vgl. Tab. 3.5 in Kap. 3.4.3).

Man sieht augenscheinlich eine gute Übereinstimmung im Verlauf aller Flammenkonfigurationen untereinander und zu den 1-D-Rechnungen. Lediglich  $H_2$ - und  $CO$ -Massenbrüche sind leicht höher als in den 1-D-Rechnungen. Das lässt darauf schließen, dass es bei der Reaktion des Gemisches bei  $\phi = 0,85$  unerheblich ist, ob eine Stratifizierung in der Flamme präsent ist. Dies ist konsistent mit der generellen Aussage von [37]: Der Verlauf der Spezies im Temperatur-Zustandsraum ist hauptsächlich vom lokalen Äquivalenzverhältnis abhängig. Die vorliegende Turbulenz ist zu gering, um sich messbar auf die Reaktion auszuwirken.

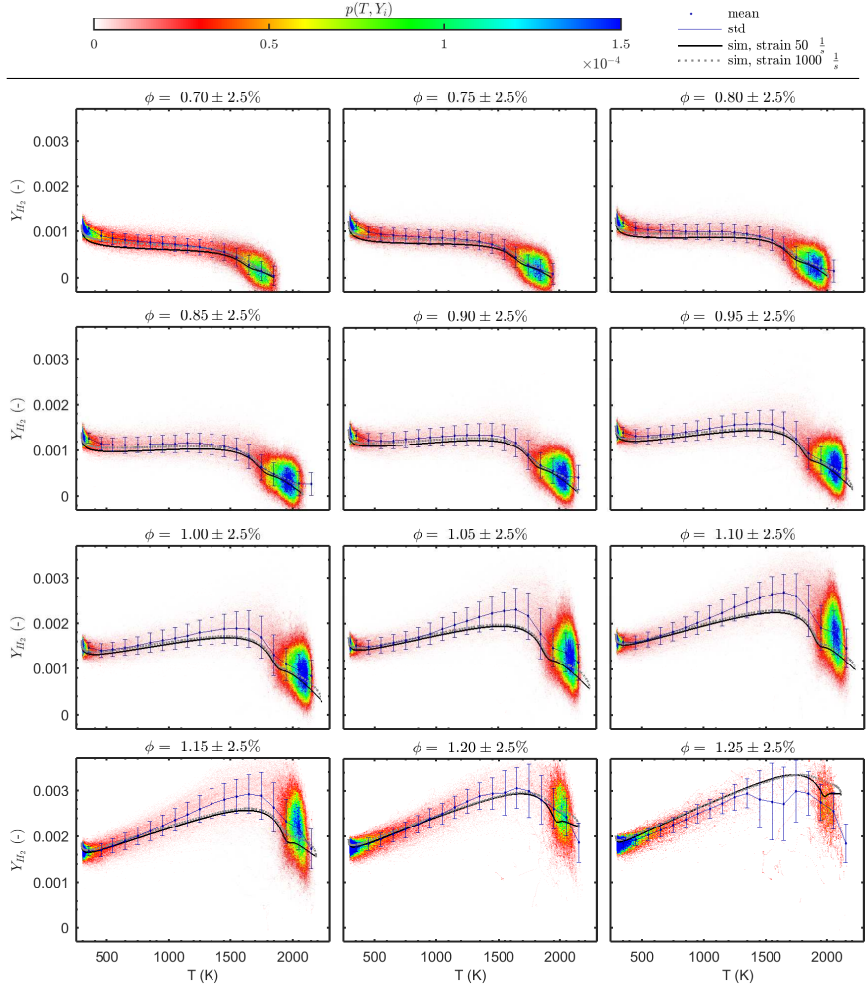
### Erhöhter $H_2$ -Massenbruch bei Konditionierung auf verschiedene Äquivalenzverhältnisse

In Abb. 4.18 ist der  $H_2$ -Massenbruch im Temperatur-Zustandsraum ausschließlich für die stratifizierte Flammenkonfiguration MHF 8 gezeigt. Konditioniert wurde dabei auf das Äquivalenzverhältnis, ansteigend von  $\phi = 0,7$  bis  $\phi = 1,25$  in Schritten von 0,05. Das heißt, dass nur Datenpunkte aus den hochaufgelösten Messdaten, bei denen das momentane lokale Äquivalenzverhältnis im Bereich von  $\phi_{soll} \pm 2,5\%$  lag, in das jeweilige Streudiagramm einbezogen wurden. Für die vorgemischten Fälle MHF 5 und 6 ist eine Konditionierung auf  $\phi \neq 0,85$  wenig zielführend, da diese Äquivalenzverhältnisse kaum vorliegen. Sie sind daher nicht gezeigt.

Wieder sind zwei verschiedene Streckungsraten von  $50\,1/s$  (quasiungestreckt) und  $1000\,1/s$  gezeigt. Die Messwerte liegen über alle  $\phi$  im Mittel näher an der gestreckten Rechnung, was so erwartet wurde. Bei  $\phi = 0,7$  befinden sich die Mittelwerte der Messpunkte über alle Temperaturen sehr nahe an der Rechnung. Das ist auch für alle weiteren mageren ( $\phi < 1$ ) Konditionierungsstufen der Fall. Erst ab  $\phi = 1,0$  beginnt der mittlere Verlauf von  $H_2$  bei Temperaturen von  $T \approx 700\,K$  bis  $T \approx 2000\,K$  über die Werte der 1-D-Rechnung zu steigen. Der Höchstwert liegt bei  $T \approx 1650\,K$  bei  $\phi = 1,1$ . Das entspricht in diesem Temperaturbereich einem um  $15\%$  erhöhten Mittelwert des  $H_2$ -Massenbruchs. Die Standardabweichung der Mittelwertschätzung für  $Y_{H_2}$  beträgt hier  $4,6 \cdot 10^{-6}$  (bei  $1600\,K < T < 1700\,K$ ,  $\phi = 1,1 \pm 2,5\%$ , 7900 Datenpunkte). Der Abstand des Mittelwertes zur gestreckten 1-D-Rechnung beträgt:  $\Delta Y_{H_2} = 401 \cdot 10^{-6}$ .

Charakteristisch für höhere Äquivalenzverhältnisse ( $\phi > 1,1$ ) ist, dass die Überhöhung des mittleren  $H_2$ -Massenbruchs sinkt und bei  $\phi = 1,2$  nicht mehr existiert. Für  $\phi = 1,25$  standen nur sehr wenige Messpunkte zur Auswertung zur Verfügung, da dieser Fall nur sehr selten vorlag. Trotzdem kann gefolgert werden, dass hier keine höheren  $H_2$ -Massenbrüche existieren, als aus den laminaren Rechnungen zu erwarten ist. Die anderen gemessenen Spezies sind dadurch gekennzeichnet, dass sie keine signifikanten Abweichungen zu den 1-D-Rechnungen zeigen, und sind deshalb in dieser Darstellung nicht gezeigt.

Der erhöhte  $H_2$ -Massenbruch kann nicht über den Ablauf der Reaktion über andere Reaktionspfade erklärt werden. Dafür gibt es keine Indizien [103]. Auch die Turbulenz als Auslöser scheint zu gering ( $Re \approx 19.500$ , abgeschätzt aus [86]). Zur näheren Betrachtung der erhöhten  $H_2$ -Massenbrüche in leicht brennstoffreichen Bereichen sind in Abb. 4.19 zwei Fälle herausgegriffen: Links oben ist der  $H_2$ -Massenbruch im Temperatur-Zustandsraum, konditioniert auf  $\phi = 0,85 \pm 2,5\%$ , gezeigt – einem Fall, in dem der Mittelwert der Punk-



**Abbildung 4.18:**  $\text{H}_2$ -Massenbruch im Temperatur-Zustandsraum für die Flamme MHF 8. Konditionierung auf das Äquivalenzverhältnis  $\phi = 0,7$  bis  $\phi = 1,25$  in Schritten von  $0,05$  ansteigend zeilenweise von links nach rechts. Alle Werte im Bereich von  $\phi = \phi_{\text{stoll}} \pm 2,5\%$  sind einbezogen. Die gemeinsame Wahrscheinlichkeitsdichte  $p(T, Y_{\text{H}_2})$  von Temperatur und  $\text{H}_2$ -Massenbruch ist farbkodiert (in Summe auf 1 normiert) und entspricht der Häufigkeit der Messwerte an dieser Stelle im Diagramm. Mittelwerte in einem 100-K-Intervall sind in blau gezeigt, vertikale Balken (Streuung der Messwerte) entsprechen der Standardabweichung. Die schwarze durchgezogene Linie entspricht der quasiungestreckten, laminaren 1-D-Rechnung, die grau gepunktete Linie der gestreckten (1000 1/s) für das jeweils mittlere Äquivalenzverhältnis, das in der Titelzeile notiert ist.

tewolke im Temperaturbereich  $1600\text{ K} < T < 1700\text{ K}$  direkt auf der 1-D-Rechnung liegt. Oben rechts wurde der  $\text{H}_2$ -Massenbruch auf  $\phi = 1,1 \pm 2,5\%$  konditioniert. Hier wurden größte Abweichung zu höheren  $\text{H}_2$ -Massenbrüchen gemessen. Zur näheren Betrachtung wurden aus den Streudiagrammen nur die Datenpunkte verwendet, die im interessanten Temperaturbereich einen relativ zum Mittelwert sehr hohen  $\text{H}_2$ -Massenbruch (rote Kästen) bzw. einen sehr niedrigen Massenbruch (blaue Kästen) aufwiesen. Als Kriterium für „hoch“ und „niedrig“ wurde der Mittelwert  $\bar{Y}$  und die Standardabweichung vom Mittelwert ( $\sigma$ ) entsprechend Gl. 4.4 herangezogen.

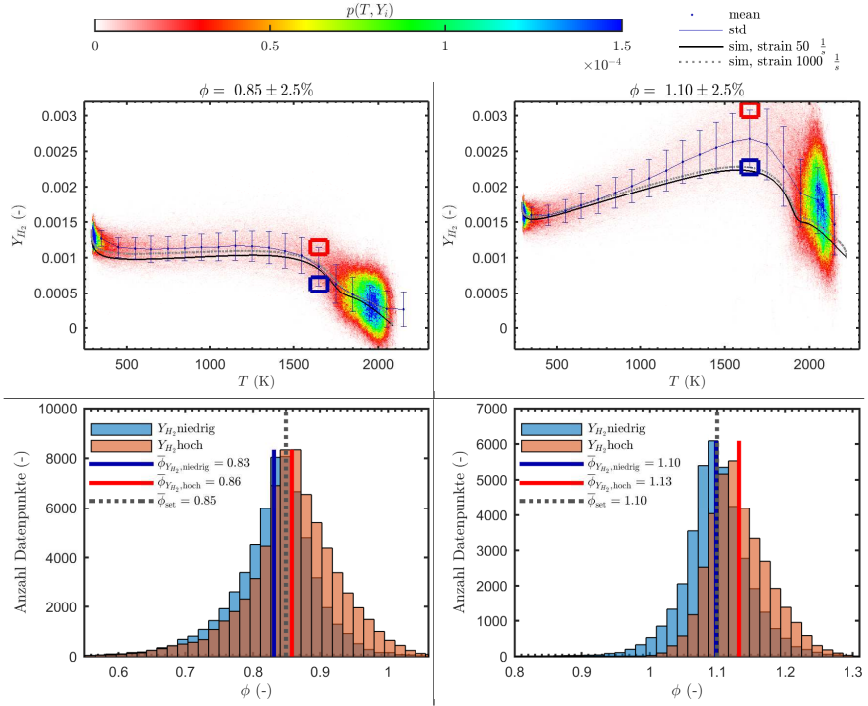
$$Y_{\text{H}_2} \begin{cases} > \bar{Y}_{\text{H}_2} + 0,5 \cdot \sigma_{Y_{\text{H}_2}} & \text{hoch} \\ < \bar{Y}_{\text{H}_2} - 0,5 \cdot \sigma_{Y_{\text{H}_2}} & \text{niedrig} \end{cases} \quad (4.4)$$

Für die selektierten Datenpunkten wurde nun in allen 40.000 Einzelschüssen die räumliche Umgebung ( $\pm 500\text{ }\mu\text{m}$ ) dieser Datenpunkte in Bezug auf das lokale Äquivalenzverhältnis  $\phi$  untersucht und in Histogrammen dargestellt (Abb. 4.19, unten). Zur Verdeutlichung dieser Art der Konditionierung sei hier ein Beispiel aufgeführt: Das lokale Äquivalenzverhältnis geht dann in das rote Histogramm in Abb. 4.19 (unten links) ein, wenn in einem Einzelschuss alle folgenden Ereignisse zutreffen: Ein Datenpunkt mit den Eigenschaften  $1600\text{ K} < T < 1700\text{ K} \cup \phi = 0,85 \pm 2,5\% \cup Y_{\text{H}_2} > 1,008 \cdot 10^{-3}$  ist näher als  $500\text{ }\mu\text{m}$ . Es wird konservativ geschätzt, dass innerhalb von  $\pm 500\text{ }\mu\text{m}$  (entsprechend ca. der doppelten Flammenfrontdicke, vgl. Kap. 2.4) alle relevanten Datenpunkte eingeschlossen werden. Für die so erstellten Häufigkeitsverteilungen wurden die Mittelwerte als vertikale Linien in der entsprechenden Farbe eingezeichnet. In allen Fällen ist die Form der Histogramme einer Gauß-Verteilung ähnlich. Im Referenzfall  $\phi = 0,85$  (unten links) ist die Häufigkeitsverteilungen in guter Näherung symmetrisch um den erwarteten Mittelwert (graue, gepunktete Linie) verteilt. Bei den stark erhöhten  $\text{H}_2$ -Massenbrüchen (unten rechts, rote Verteilung) beträgt der Mittelwert der Verteilung  $\bar{\phi} = 1,13$  und ist damit weit zu höheren  $\phi$  verschoben. Das bedeutet, dass an der Stelle, an der in der Flamme ein sehr hoher  $\text{H}_2$ -Massenbruch (roter Kasten) auftritt, die Wahrscheinlichkeit sehr groß ist, in der räumlichen Nachbarschaft ein hohes lokales  $\phi$  vorzufinden. Dies ist ein eindeutiger Beleg dafür, dass die  $\text{H}_2$ -Konzentration durch Diffusion von benachbart vorliegendem  $\text{H}_2$  erhöht wird.

Dabei muss das benachbarte Gemisch mit höherem lokalen  $\phi$  ebenfalls reagieren. Bei kaltem Gemisch ( $T \approx 300\text{ K}$ ) wäre die  $\text{H}_2$ -Konzentration dort sonst lediglich so groß, wie initial im Brennstoff-Luft-Gemisch eingestellt. Wäre das Gemisch noch nicht in der Reaktion, wäre damit der räumliche Gradient als Triebkraft der Diffusion zu klein, um den  $\text{H}_2$ -Massenbruch im untersuchten Fall derartig zu erhöhen. Ein  $\text{H}_2$ -Massenbruch von  $Y_{\text{H}_2} > 0,00288$  (Abb. 4.19 roter Kasten, oben rechts) erscheint bei  $\phi = 1,1$  deutlich über der 1-D-Rechnung, liegt bei  $\phi = 1,25$  aber auf dem Verlauf der 1-D-Rechnung (vgl. Abb. 4.18 unten rechts im Temperaturintervall von  $1600\text{ K} < T < 1700\text{ K}$ ).

Bei Konditionierung auf brennstoffreichere Gemische ( $\phi \geq 1,2$ ) liegt in den untersuchten Flammenkonfigurationen in der nahen Umgebung niemals ein brennstoffreicheres Gemisch vor. Das größte mögliche Äquivalenzverhältnis ist  $\phi = 1,25$  in Ring 2 bei MHF 7 und 8. Deshalb zeigt sich hier keine  $\text{H}_2$ -Überhöhung im mittleren Temperaturbereich (vgl. Abb. 4.18 unten Mitte und unten rechts).

In mageren Gemischen ( $\phi < 1,0$ ) kann das benachbarte Gemisch ein größeres  $\phi$  besitzen, führt aber nicht zu erhöhten  $\text{H}_2$ -Massenbrüchen, wie bei  $\phi = 1,1$  beobachtet. Es wird angenommen, dass  $\text{H}_2$  hier aufgrund des im Überschuss vorhandenen  $\text{O}_2$  direkt reagiert



**Abbildung 4.19:**  $\text{H}_2$ -Massenbruch im Temperatur-Zustandsraum für die Flamme MHF 8 (oben) konditioniert auf  $\phi = 0,85$  (links) und  $\phi = 1,1$  (rechts), identisch wie in Abb. 4.18. Datenbereiche für die Erstellung der Histogrammdateien im Temperaturbereich  $1600 \text{ K} < T < 1700 \text{ K}$  sind mit Kästen markiert: Rot: relativ große  $\text{H}_2$ -Massenbrüche, Blau: relativ kleine  $\text{H}_2$ -Massenbrüche. Histogramme (unten) über die Häufigkeit des auftretenden Äquivalenzverhältnisses in allen Messpunkten, die räumlich (bis zu  $\pm 500 \mu\text{m}$ ) neben den, in den Streudiagrammen (oben) mit Kästen markierten Bereichen liegen. Häufigkeitsverteilungen: Rot: Punkte aus dem Bereich des roten Kastens jeweils im Diagramm darüber (d. h. große  $\text{H}_2$ -Massenbrüche); Blau: Punkte aus dem Bereich des blauen Kastens jeweils im Diagramm darüber (d. h. kleine  $\text{H}_2$ -Massenbrüche). Die Mittelwerte der Häufigkeitsverteilung von  $\phi$  sind als rote bzw. blaue Linien dargestellt. Die grau gepunktete Linie markiert den Mittelwert (engl. *setpoint*, dt. Sollwert) des Äquivalenzverhältnisses, das am relevanten Punkt vorliegt – entsprechend dem  $\phi$ , das bei homogener räumlicher Verteilung der Mischung vorliegen würde.

und daher nicht wegdiffundieren kann. Erst die Kombination aus einem Mangel an  $\text{O}_2$  als Reaktionspartner und der niedrigen  $\text{H}_2$ -Konzentration im benachbarten Gemisch führt zur starken räumlichen Diffusion des  $\text{H}_2$ .

Zusammenfassend wird die Hypothese bestätigt:  $\text{H}_2$ -Massenbrüche, die größer sind als aus den laminaren 1-D-Rechnungen erwartet, treten wahrscheinlicher auf, wenn in ihrer nahen Umgebung ein brennstoffreicheres Gemisch vorliegt. Erst bei global brennstoffreichen Gemischen, in denen  $\text{O}_2$ -Mangel herrscht, sind die Speziesverläufe im Temperatur-Zustandsraum nicht ausschließlich eine Funktion des lokalen Äquivalenzverhältnisses, sondern auch des Äquivalenzverhältnisses der nächsten Umgebung.

### Vergleich bei Konditionierung auf alle $\phi$ innerhalb einer Grafik

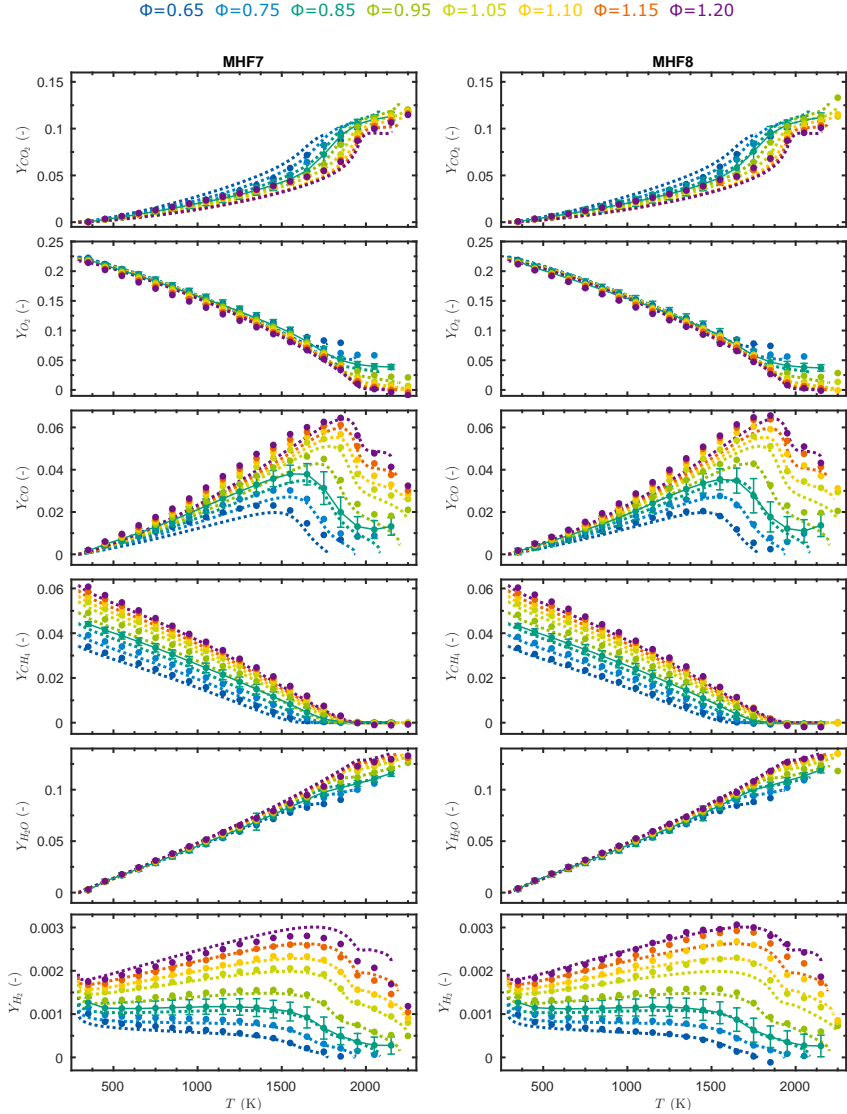
In Abb. 4.20 sind für die Flammen MHF 7 und 8 die Massenbrüche der Spezies  $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2$  im Temperatur-Zustandsraum aufgetragen. Sie sind zum Vergleich mit den gestreckten ( $a = 1000 \text{ 1/s}$ ) laminaren 1-D-Rechnungen in der gleichen Farbe dargestellt.

Im Unterschied zu Abb. 4.17 (nur  $\phi = 0,85$  gezeigt) wurde nun auf verschiedene Äquivalenzverhältnisse  $\phi = 0,65, 0,75, 0,85, 0,95, 1,05, 1,1, 1,15, 1,20$ , jeweils  $\pm 2,5\%$  konditioniert. Die geringe Spreizung des Äquivalenzverhältnisses im brennstoffreichen Bereich ( $\Delta\phi = 0,05$ ) wurde gewählt, um den Effekt der  $\text{H}_2$ -Erhöhung herauszustellen. Daten, die auf Werte außerhalb von  $0,65 < \phi < 1,25$  limitiert sind, werden aufgrund der zu geringen Datenbasis nicht gezeigt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit sind nur für  $\phi = 0,85$  vertikale Balken gezeigt, die die Streuung der Messwerte (Standardabweichung) in einem 100-K-Intervall repräsentieren.

Die Verläufe von  $Y_{\text{H}_2\text{O}}$  und  $Y_{\text{O}_2}$  sind für alle verschiedenen Äquivalenzverhältnisse sehr ähnlich. Die Messwerte liegen sehr nahe an den jeweiligen 1-D-Rechnungen. Die Messwerte von  $Y_{\text{CO}_2}$  sind bei allen Gemischen um die 1-D-Rechnung von  $\phi = 0,85$  konzentriert.  $Y_{\text{CO}}$  liegt für alle  $\phi$  bis zum Maximalwert, der sich mit steigendem  $\phi$  erhöht, geringfügig über der jeweiligen Rechnung.  $Y_{\text{CH}_4}$  folgt sehr gut den Verläufen, die in einer laminaren 1-D-Flamme zu erwarten sind. Bei sehr hohen Temperaturen  $T > 2000 \text{ K}$  nehmen die Massenbrüche leicht negative Werte an. Diese unphysikalischen Resultate in diesem Bereich kommen durch die Verwendung eines gemittelten Multiplikators für alle Messtage von  $\text{CH}_4 \ll \text{H}_2\text{O}$  zustande. Sie sind für die Aussagekraft der Grafiken unbedeutend, da der Fokus der Untersuchung in diesem Temperaturbereich auf anderen Spezies als dem komplett reagierten  $\text{CH}_4$  liegt. Die Verläufe aller Spezies sind, mit Ausnahme von  $Y_{\text{H}_2}$ , sehr nahe an den 1-D-Rechnungen und auch zwischen den Flammen MHF 7 und 8 sehr ähnlich.

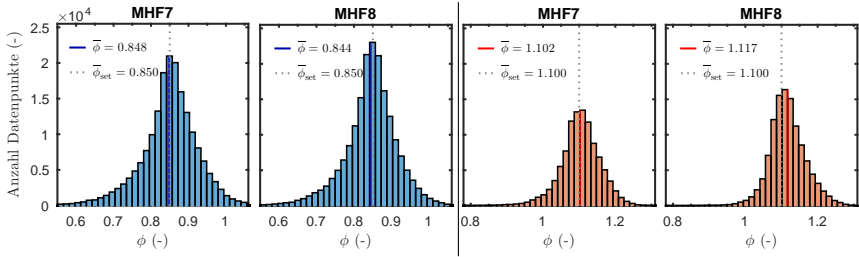
Bei  $Y_{\text{H}_2}$  in MHF 8 (Abb. 4.20, unten rechts) wird der oben besprochene Effekt, der Erhöhung des  $\text{H}_2$ -Massenbruches bei leicht brennstoffreichen Gemischen (vgl. Abb. 4.18), noch einmal deutlich: Die mittleren Massenbrüche von  $\text{H}_2$  bei  $\phi = 1,1$  (gelbe Punkte) liegen deutlich höher als die entsprechende (gelb markierte) 1-D-Rechnung. Bei  $\phi = 1,2$  ist dieser Effekt nicht mehr vorhanden. Im Gegensatz dazu, sind die Massenbrüche von  $\text{H}_2$  in der Konfiguration MHF 7 dadurch gekennzeichnet, dass sie bei allen konditionierten Äquivalenzverhältnissen sehr nahe an der entsprechenden 1-D-Rechnung liegen. Lediglich bei  $\phi = 1,2$  sind die Mittelwerte niedriger als in der Rechnung.

Eine Erhöhung von  $Y_{\text{H}_2}$ , wie in MHF 8 beobachtet, tritt in MHF 7 nicht auf. Dies ist durch ein unterschiedliches umgebendes Gemisch in den Flammen MHF 7 und 8 verursacht, das einerseits an der anderen Messposition liegt (MHF 7:  $r = 32 \text{ mm}$ , MHF 8:  $r = 29 \text{ mm}$ ) und andererseits an der durch Scherung (MHF 7: Ring 2:  $10 \text{ m/s}$ , MHF 8: Ring 2:  $15 \text{ m/s}$ ) veränderten Flammgeometrie (vgl. Abb. 4.5). Eine geeignete Möglichkeit der Beschreibung des umgebenden Gemisches ist über Häufigkeitsverteilungen in Abb. 4.21 möglich. Hier ist, ähnlich zu Abb. 4.19, das Äquivalenzverhältnis des räumlich umgebenden Gemisches ( $\pm 500 \mu\text{m}$ ) an einem Punkt im Temperaturbereich  $1600 \text{ K} < T < 1700 \text{ K}$  und einem Äquivalenzverhältnis von  $\phi = 0,85 \pm 2,5\%$  (blaue Histogramme) und  $\phi = 1,1 \pm 2,5\%$  (rote Histogramme) für die Flammen MHF 7 und 8 aufgetragen. Eine Konditionierung auf den  $\text{H}_2$ -Massenbruch findet, anders als in Abb. 4.19, nicht statt. Die Häufigkeitsverteilungen bei Konditionierung auf  $\phi = 1,1 \pm 2,5\%$  (rote Histogramme) zeigen, dass das umgebende Gemisch bei MHF 8 im Mittel deutlich brennstoffreicher ist ( $\Delta\phi = 1,117 - 1,100 = +0,017$ ) als bei MHF 7 ( $\Delta\phi = +0,002$ ). Folglich kann nur bei MHF 8 in der Umgebung mehr  $\text{H}_2$



**Abbildung 4.20:** Massenbrüche der Spezies  $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2$  im Temperatur-Zustandsraum für die Flammen MHF 7 (links) und 8 (rechts). Farbkodiert ist das Äquivalenzverhältnis ( $\phi = 0,65 \pm 2,5\%$  bis  $1,20 \pm 2,5\%$ ), auf das konditioniert wurde. Die Punkte repräsentieren die Mittelwerte in einem 100-K-Intervall. Für  $\phi = 0,85$  sind vertikale Balken (entsprechen der Streuung der Messwerte um die Standardabweichung) eingezeichnet. Die farblich kodierten gestrichelten Linien repräsentieren die gestreckte laminare 1-D-Rechnung ( $a = 1000 \text{ 1/s}$ ) für das jeweilige Äquivalenzverhältnis.

in der Reaktionszone entstehen und in den relevanten Messbereich diffundieren. In den Referenzhistogrammen bei  $\phi = 0,85 \pm 2,5\%$  (blaue Histogramme) sind in MHF 7 und MHF 8 die Verteilungen von  $\phi$  in erster Näherung sehr symmetrisch um das mittlere Äquivalenzverhältnis von  $\phi = 0,85$  verteilt, das bei homogener räumlicher Verteilung der Mischung vorliegen würde.



**Abbildung 4.21:** Histogramme über die Häufigkeit der auftretenden Äquivalenzverhältnisse  $\phi$  für die Flammen MHF 7 und 8. Ausgewählt sind Datenpunkte im Temperaturbereich  $1600\text{ K} < T < 1700\text{ K}$  in der nahen räumlichen Umgebung ( $\pm 500\text{ }\mu\text{m}$ ) um einen Datenpunkt mit  $\phi = 0,85 \pm 2,5\%$  (links, blaue Histogramme) und  $\phi = 1,1 \pm 2,5\%$  (rechts, rote Histogramme). Die Mittelwerte der Häufigkeitsverteilung von  $\phi$  sind als rote bzw. blaue Linien dargestellt. Die grau gepunktete Linie markiert den Mittelwert (engl. *setpoint*, dt. Sollwert) des Äquivalenzverhältnisses, das am relevanten Punkt vorliegt – entsprechend dem  $\phi$  was bei homogener räumlicher Verteilung der Mischung vorliegen würde. Die Abbildung ist ähnlich zu Abb. 4.19, nur dass hier keine Konditionierung auf den  $\text{H}_2$ -Massenbruch stattfindet.

## Zusammenfassung

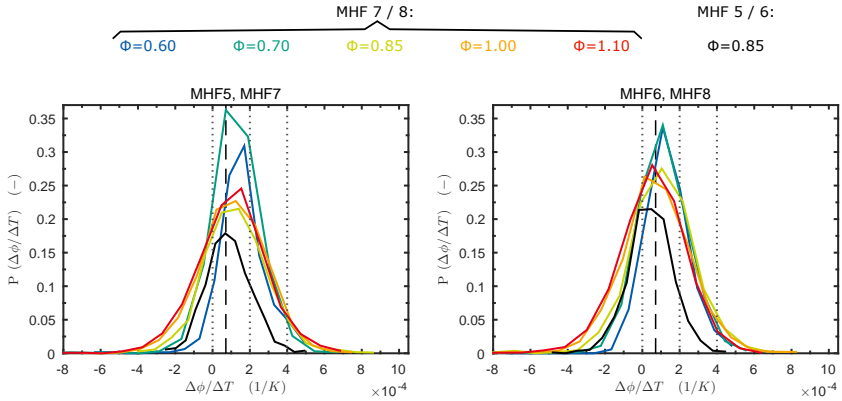
Aus der Konditionierung der Messdaten auf das lokale Äquivalenzverhältnis ergibt sich folgendes Ergebnis für die Mikrostruktur der Flamme: Mit Ausnahme von  $\text{H}_2$  sind die Speziesverläufe im Temperatur-Zustandsraum hauptsächlich eine Funktion des lokalen Äquivalenzverhältnisses. Die  $\text{H}_2$ -Massenbrüche weichen im brennstoffreichen Gemisch ( $\phi > 1$ ) im Vergleich zu entsprechenden laminaren 1-D-Rechnungen zu höheren Werten ab. Dies geschieht durch Diffusion von  $\text{H}_2$  und mit höherer Wahrscheinlichkeit, wenn zwei Voraussetzung erfüllt sind: 1. Es müssen in der nahen Umgebung ( $\pm 500\text{ }\mu\text{m}$ ) Bereiche mit einem höheren Äquivalenzverhältnis vorliegen. Nur dann existiert dort eine höhere  $\text{H}_2$ -Konzentration als Ursprungsort für  $\text{H}_2$ . 2. Es muss dort ein Mangel an  $\text{O}_2$  herrschen, da sonst  $\text{H}_2$  direkt vollständig reagieren würde. Die  $\text{H}_2$ -Speziesverläufe im Temperatur-Zustandsraum sind hier eine Funktion des lokalen Äquivalenzverhältnisses und des Äquivalenzverhältnisses der nächsten Umgebung.

### 4.3.3 Konditionierung auf die Stratifizierung und das Äquivalenzverhältnis

In diesem Kapitel werden die Profile der Temperatur und Spezieskonzentrationen dargestellt, welche nun zusätzlich zum lokalen Äquivalenzverhältnis auch auf die Stratifizierung konditioniert werden. Dies geschieht, um den Effekt der Stratifizierung auf die Mikrostruktur der Flamme zu untersuchen.



## Grad der Stratifizierung



**Abbildung 4.22:** Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung ( $P$ ) über die auftretende Stratifizierung ( $\frac{\Delta\phi}{\Delta T}$ ) für die Flammen MHF 5 und 7 (links) und 6 und 8 (rechts). Die vorgemischten Fälle MHF 5 und 6 sind konditioniert auf  $\phi = 0,85$  (schwarz), die stratifizierten Fälle MHF 7 und 8 sind konditioniert auf fünf verschiedene Äquivalenzverhältnisse (farblich kodiert). Die vertikale schwarz gestrichelte Linie zeigt den Wert der Stratifizierung, den eine 1-D laminare Flamme ( $a = 1000 \text{ 1/s}$ ) nach der verwendeten Definition hat. Die vertikalen, grau gepunkteten Linien markieren die Grenzen zwischen den vier Stratifizierungslevels, die in Abb. 4.23 f. verwendet werden.

Die Stratifizierung wird definiert über die Änderung des lokalen Äquivalenzverhältnisses, bezogen auf die Änderung der Temperatur:  $\Delta\phi/\Delta T$ . Das Temperaturintervall, in dem  $(\Delta\phi)$  untersucht wird, hat seine Grenzen 200 K unterhalb und 100 K oberhalb der Temperatur, bei der die CO-Konzentration ihr Maximum erreicht (vgl. Kap. 3.4.5). Durch die Definition der Stratifizierung in Bezug auf  $\Delta T$  anstatt auf  $\Delta r$  kann die Anzahl der zur Auswertung verfügbaren Flammenfronten um ca. den Faktor 2 gesteigert werden. Bei Bestimmung über  $\Delta\phi/\Delta r$  (vgl. [92, 98]) müssen wegen der zusätzlich verwendeten Messtechnik der gekreuzten OH-PLIF-Lichtsnitte deutlich mehr Flammenfronten verworfen werden (vgl. Kap. 3.4.4). In Abb. 4.22 ist die Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung der gemessenen Stratifizierung für die Konfigurationen MHF 5-8 gezeigt. Die Anzahl der Ereignisse, d. h. Anzahl der analysierten Flammenfronten, für jeden Graph in Abb. 4.22 ist in Tab. 4.3 gegeben.

**Tabelle 4.3:** Anzahl der Ereignisse, die in die Auswertung der Stratifizierung eingehen – entsprechend Anzahl der einbezogenen Flammenfronten – nach Konditionierung auf einen Bereich um das angegebene Äquivalenzverhältnis ( $\pm 2,5\%$ ). Werte, die in Abb. 4.22 verwendet werden, sind fettgedruckt dargestellt.

	alle $\phi$	$\phi = 0,6$	$\phi = 0,7$	$\phi = 0,85$	$\phi = 1,0$	$\phi = 1,1$
MHF 5	2983	-	-	<b>520</b>	-	-
MHF 6	2814	-	-	<b>791</b>	-	-
MHF 7	21120	<b>637</b>	<b>1356</b>	<b>1792</b>	<b>1943</b>	<b>1319</b>
MHF 8	19913	<b>523</b>	<b>1817</b>	<b>1586</b>	<b>1428</b>	<b>1180</b>

Für die stratifizierten Fälle MHF 7 und 8 sind die Verteilungen konditioniert auf  $\phi = 0,60 \pm 2,5\%$  bis  $\phi = 1,10 \pm 2,5\%$ . Das Äquivalenzverhältnis, auf das konditioniert wird,

wird immer an der Stelle des maximalen CO-Massenbruches ausgelesen, die sehr nahe am Ort der maximalen Wärmefreisetzung liegt (vgl. Kap. 2.4). Für die vorgemischten Fälle MHF 5 und 6 wird nur auf ein lokales Äquivalenzverhältnis von  $\phi = 0,85$  konditioniert. Das lokale  $\phi$  liegt hier naturgemäß immer nahe an diesem Wert.

Wie in Kap. 2.1.3 gezeigt, ist in einer laminaren frei propagierenden Flamme  $\Delta\phi/\Delta T > 0$ , d. h. die Flamme ist immer *back supported*. Das ist auch in allen gemessenen Flammen der Regelfall. Der Wert der Stratifizierung, den eine 1-D laminare Flamme nach der verwendeten Definition hat, beträgt  $0,71 \cdot 10^{-4} \text{ 1/K}$  (bei  $\phi = 0,85$ ) und wird über eine räumliche Ausdehnung von  $140 \mu\text{m}$  bestimmt. Er ist als vertikale schwarz gestrichelte Linie in Abb. 4.22 (jeweils links und rechts) eingezeichnet. Die Verläufe von MHF 5 und 6 sind sehr symmetrisch um diesen Wert verteilt und zeigen, wie zu erwarten, kaum Stratifizierung. Für MHF 7 und 8 gilt: Von mager nach brennstoffreich tritt zunehmend häufiger negative Stratifizierung auf, d. h. die Flamme ist häufiger *front supported*. Die Maxima der Verteilungen von MHF 7 und 8 liegen bei höheren Stratifizierungslevels, im Bereich:  $\Delta\phi/\Delta T \approx 1,5 \cdot 10^{-4} \text{ 1/K}$ . Die betragsmäßig niedrigsten Stratifizierungslevels ( $0 < \Delta\phi/\Delta T < 2 \cdot 10^{-4} \text{ 1/K}$ ) finden sich in lokal mageren Flammen, gekennzeichnet durch schmale Verteilungen (vgl. Abb. 4.22,  $\phi = 0,70$ ) mit dem Maximalwert bei geringer Stratifizierung. Bei sehr mageren Mischungen ( $\phi \leq 0,6$ ) existieren keine Flammenfronten mit negativer Stratifizierung. Eine Flamme müsste hier in ein noch brennstoffärmeres Gemisch propagieren. Dort ist die Wärmefreisetzung sehr gering, die Flamme würde verlöschen.

Die Maximalwerte aller Verteilungen liegen bei den stratifizierten Fällen MHF 7 und 8 im Bereich  $0 < \Delta\phi/\Delta T < 2 \cdot 10^{-4} \text{ 1/K}$ , damit ist das Stratifizierungslevel häufig moderat. Die Datenpunkte jedes Äquivalenzverhältnisses werden im Folgenden, in Anlehnung an [98], in vier Stratifizierungslevel ( $1/\text{K}$ ) eingeteilt:

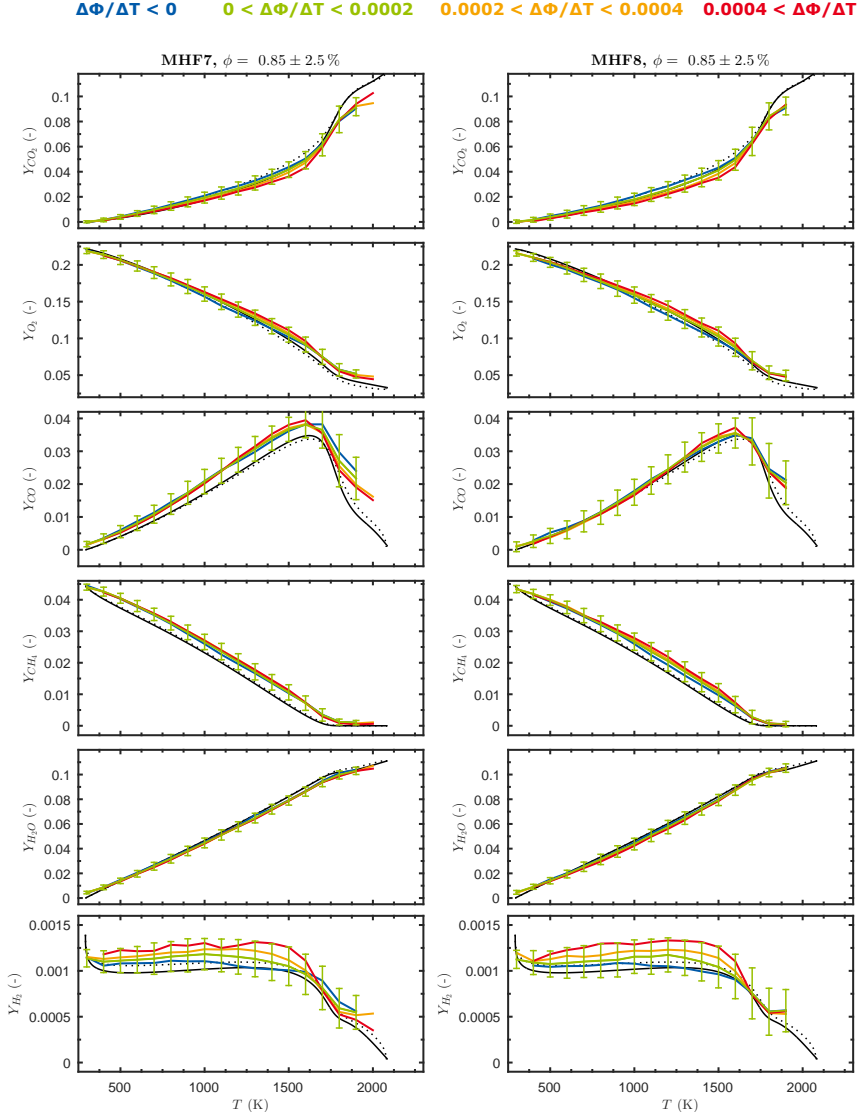
$$\begin{aligned} \Delta\phi/\Delta T &< 0, \\ 0 &< \Delta\phi/\Delta T < 2 \cdot 10^{-4}, \\ 2 \cdot 10^{-4} &< \Delta\phi/\Delta T < 4 \cdot 10^{-4}, \\ 4 \cdot 10^{-4} &< \Delta\phi/\Delta T. \end{aligned} \tag{4.5}$$

Die Grenzen der so definierten Bereiche sind in Abb. 4.22 durch vertikale grau gepunktete Linien markiert.

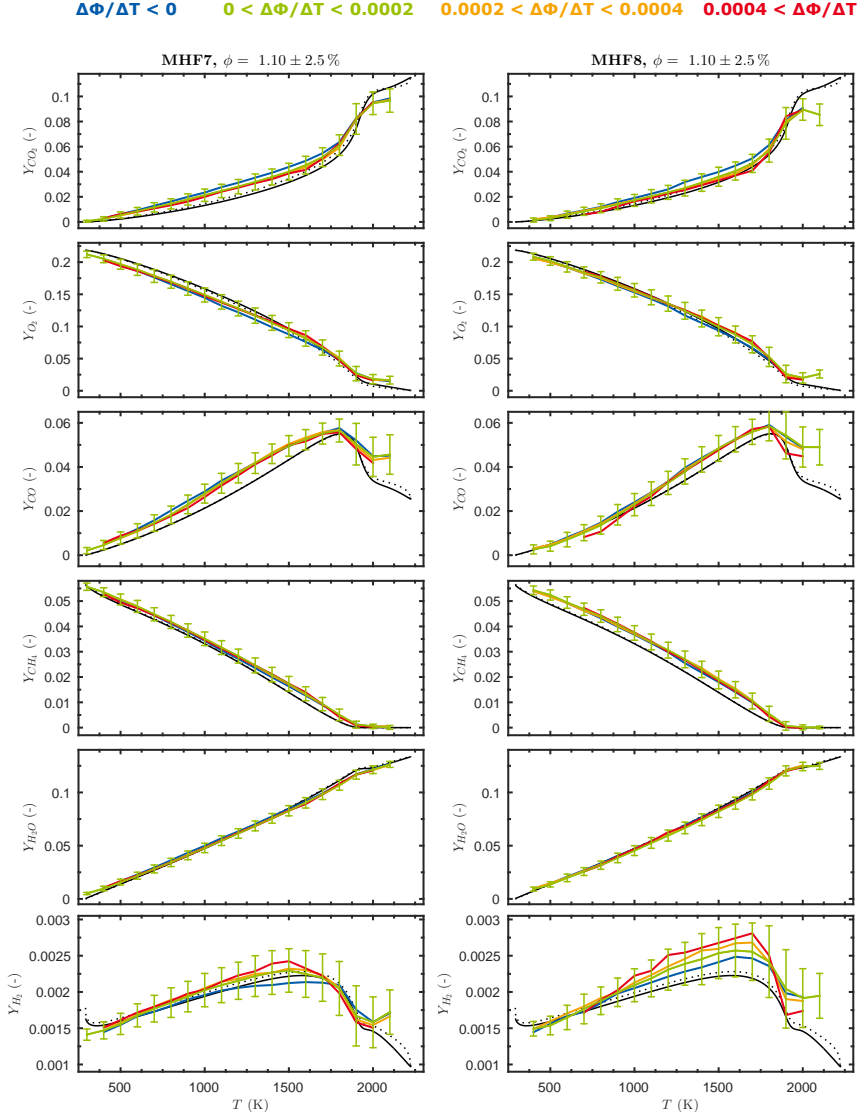
Die Ausdehnung der mageren Verlöschgrenze durch positive Stratifizierung wie in [28, 39] wurde hier nicht untersucht. Dies liegt daran, dass im *flame brush* nahezu immer brennstoffreichere Mischungen vorliegen, da das Äquivalenzverhältnis aufgrund von Mischung mit Gasen aus Ring 1 geschieht, bevor die Flammenzone erreicht wird. Es stehen daher hier zu wenige Datenpunkte für eine aussagekräftige Auswertung zur Verfügung. Die magere Verlöschgrenze eines Gemisches mit 20-Vol %  $\text{H}_2$  liegt in ungestreckten Flammen nahe bei  $\phi = 0,45$  [109].

### Doppelte Konditionierung der Skalardaten auf $\phi$ und $\Delta\phi/\Delta T$

In Abb. 4.23 und 4.24 sind die Massenbrüche der Spezies  $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2$  im Temperatur-Zustandsraum gezeigt. Die Konditionierung erfolgt auf das Äquivalenzverhältnis  $\phi = 0,85$  (in Abb. 4.23) bzw.  $\phi = 1,1$  (in Abb. 4.24) und die lokale Stratifizierung ( $\Delta\phi/\Delta T$ ) am Ort der Flammenfront. Mit Ausnahme von  $\text{H}_2$  ist der Einfluss der Stratifizierung auf den Verlauf der Speziesmassenbrüche sehr gering. Der Verlauf des



**Abbildung 4.23:** Massenbrüche der Spezies  $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2$  im Temperatur-Zustandsraum für die Flammen MHF 7 (links) und MHF 8 (rechts). Konditionierung auf das Äquivalenzverhältnis  $\phi = 0,85 \pm 2,5\%$  und auf vier Stratifizierungslevels ( $\Delta\phi/\Delta T$ ) (farblich kodiert), wie in Abb. 4.22 definiert. Die Mittelwerte der Massenbrüche sind jeweils in einem 100-K-Intervall gebildet und mit dem nächsten verbunden. Für  $0 < \Delta\phi/\Delta T < 2 \cdot 10^{-4} \text{ 1/K}$  sind vertikale Balken (entsprechen der Streuung der Messwerte um die Standardabweichung) eingezeichnet. Die schwarze durchgezogene Linie entspricht der quasiungestreckten laminaren 1-D-Rechnung, die gestrichelte Linie der gestreckten ( $a = 1000 \text{ 1/s}$ ) für das mittlere Äquivalenzverhältnis von  $\phi = 0,85$ .



**Abbildung 4.24:** Massenbrüche der Spezies  $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2$  im Temperatur-Zustandsraum für die Flammen MHF 7 (links) und MHF 8 (rechts). Konditionierung auf das Äquivalenzverhältnis  $\phi = 1,1 \pm 2,5\%$  und auf vier Stratifizierungslevels ( $\Delta\phi/\Delta T$ ) (farblich kodiert), wie in Abb. 4.22 definiert. Die Mittelwerte der Massenbrüche sind jeweils in einem 100-K-Intervall gebildet und mit dem nächsten verbunden. Für  $0 < \Delta\phi/\Delta T < 2 \cdot 10^{-4} \text{ 1/K}$  sind vertikale Balken (entsprechen der Streuung der Messwerte um die Standardabweichung) eingezeichnet. Die schwarze durchgezogene Linie entspricht der quasiungestreckten laminaren 1-D-Rechnung, die gestrichelte Linie der gestreckten ( $a = 1000 \text{ 1/s}$ ) für das mittlere Äquivalenzverhältnis von  $\phi = 1,1$ .

CO-Massenbruchs ist in den MHF-Konfigurationen, anders als in reinen Methanflammen (vgl. [98]), unabhängig vom Grad der Stratifizierung.

Im Temperaturbereich von  $400\text{ K} < T < 1700\text{ K}$  steigt  $Y_{H_2}$  mit zunehmender Stratifizierung aufgrund des höheren Äquivalenzverhältnisses im benachbarten Gemisch. Nur das stark diffusive  $H_2$  wird präferentiell zur Vorwärmzone transportiert (vgl. [98]) und führt hier zu höheren Konzentration als aus den 1-D-Rechnungen erwartet. Aufgrund der initialen Kodotierung von  $H_2$  und dem Vorhandensein brennstoffreicher Gemische ist der Effekt stärker ausgeprägt als in reinen Methanflammen (vgl. [92]). Bei Konditionierung auf  $\phi = 0,85$  (Abb. 4.23) wird deutlich, dass die höheren  $H_2$ -Massenbrüche nur bei großen, positiven Werten der Stratifizierung auftreten ( $\Delta\phi/\Delta T > 2 \cdot 10^{-4}\text{ 1/K}$ ). Nicht oder nur gering stratifizierte Verläufe ( $0 < \Delta\phi/\Delta T < 2 \cdot 10^{-4}\text{ 1/K}$ ) liegen sehr nahe an den 1-D-Rechnungen: Hier existiert kein großer Gradient des Äquivalenzverhältnisses. Folglich gibt es keine hohen  $H_2$ -Konzentrationen, aus welchen  $H_2$  dann in den relevanten Bereich eindiffundieren kann. In MHF 8 bei  $\phi = 1,1$  (Abb. 4.24, unten rechts) ist auch in den nicht oder nur gering stratifizierten Messpunkten der  $H_2$ -Massenbruch erhöht. Dies wird auf den Mangel an  $O_2$  zurückgeführt, der die sofortige Reaktion von  $H_2$  unterbindet und den räumlichen Gradienten von  $H_2$  aufrechterhält.

Wie in Abb. 4.22 (roter Verlauf,  $\phi = 1,1$ ) gezeigt, sind die Stratifizierungslevels in MHF 7 und 8 im Brennstoffreichen sehr ähnlich. Trotzdem ist der  $H_2$ -Massenbruch bei MHF 7 (anders als bei MHF 8) bei geringer Stratifizierung ( $0 < \Delta\phi/\Delta T < 2 \cdot 10^{-4}\text{ 1/K}$ , grüner Verlauf) nicht erhöht (vgl. Abb. 4.24, unten links und unten rechts). In Abb. 4.21 (rote Histogramme) wurde gezeigt, dass das lokale  $\phi$  in MHF 8 in der Umgebung ( $r = \pm 500\text{ }\mu\text{m}$ ) der Flammenfront erhöht ist, während dies bei MHF 7 nicht der Fall ist. Mit der verwendeten Definition der Stratifizierung ( $\Delta\phi/\Delta T$ ) wird nur ein kleinerer Bereich (ca.  $r < \pm 200\text{ }\mu\text{m}$  um die Flammenfront) hinsichtlich seines Gradienten von  $\phi$  untersucht. Das bedeutet, dass der Bereich, der von der Flammenfront weiter als  $200\text{ }\mu\text{m}$  entfernt ist, in MHF 8 für den erhöhten  $H_2$ -Massenbruch ursächlich ist.

Daraus kann gefolgert werden: Liegt in der Umgebung der Flammenfront im Mittel ein höheres Äquivalenzverhältnis vor als in der Flammenfront selbst (bei MHF 8), so ist die „Basislinie“, bei der keine Stratifizierung vorliegt, zu höheren  $H_2$ -Massenbrüchen verschoben. Ist das Äquivalenzverhältnis in der Umgebung der Flammenfront und der Flammenfront gleich (bei MHF 7), liegt die „Basislinie“, bei der keine Stratifizierung vorliegt, auf den 1-D-Rechnungen.

Der Übergang von negativer zu positiver Stratifizierung ( $\Delta\phi/\Delta T < 0$  bzw.  $> 0$ ) erscheint kontinuierlich. Gleiches gilt damit für die Einteilung in *front* und *back supported flames*.

## Zusammenfassung

Im vorangegangenen Abschnitt wurden die Messdaten der MHF 5-8 doppelt konditioniert: auf das Äquivalenzverhältnis ( $\phi$ ) und die lokale Stratifizierung ( $\Delta\phi/\Delta T$ ). Im Temperatur-Zustandsraum können damit Rückschlüsse auf die Mikrostruktur der Flamme gezogen werden: Der Verlauf des  $H_2$ -Massenbruchs ist als Einziger sensitiv auf den Grad der Stratifizierung. Je größer die Stratifizierung ( $\Delta\phi/\Delta T$ ), desto stärker sind die  $H_2$ -Massenbrüche im mittleren Temperaturbereich ( $400\text{ K} < T < 1700\text{ K}$ ) erhöht. Dies geschieht bei allen Äquivalenzverhältnissen.

Die Stratifizierung in den MHF-Konfigurationen ist symmetrisch um ihr Maximum bei nur moderaten Stratifizierungslevels von  $\Delta\phi/\Delta T \approx 1,5 \cdot 10^{-4}\text{ 1/K}$  verteilt. Ohne Konditionierung auf die lokale Stratifizierung ist kein Einfluss auf den  $H_2$ -Speziesverlauf im

Temperatur-Zustandsraum erkennbar. Liegt in der nächsten Umgebung ein höheres Äquivalenzverhältnis vor, so ist die „Basislinie“, bei der keine Stratifizierung vorliegt, zu höheren  $H_2$ -Massenbrüchen verschoben. Gemeinsam mit den Folgerungen aus Kap. 4.3.2 kann gezeigt werden, dass der  $H_2$ -Speziesverlauf eine Funktion des lokalen Äquivalenzverhältnisses, des Äquivalenzverhältnisses der nächsten Umgebung und der lokalen Stratifizierung ist.

Die gezeigten Unterschiede in der Mikrostruktur erscheinen klein. Dennoch beeinflussen sie makroskopisch das Erscheinungsbild der Flammen (vgl. Kap. 4.2.1). Die kleineren Öffnungswinkel und Kegelbreiten der stratifizierten Flammen MHF 7 und 8, im Vergleich zu ihren vorgemischten Referenzfällen, sind direkte Auswirkungen der Unterschiede in der Mikrostruktur der Flammen. Mit der grundlegenden Analyse im vorangehenden Kapitel konnte damit der große Einfluss der  $H_2$ -Kodotierung und der Stratifizierung auf die Flammenstruktur gezeigt werden.

# Kapitel 5

## Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde die Kodotierung von Wasserstoff zu Methanflammen untersucht. Der Fokus lag auf maßvollen Graden der Kodotierung von bis zu 40Vol.-%  $\text{H}_2$ . Die Beimischung von  $\text{H}_2$  zu  $\text{CH}_4$  erscheint als ein realitätsnahes Szenario für den Übergang zu regenerativen Energien, da Wasserstoff als Energieträger aus überschüssigem regenerativ erzeugtem Strom gut verfügbar und Methan als Brennstoff bereits weit verbreitet ist.

Diese Dissertation hat zum Ziel, detaillierte Informationen über den Einfluss der  $\text{H}_2$ -Kodotierung auf das makroskopische Erscheinungsbild generischer Flammen und besonders auf deren Mikrostruktur zu liefern. Die experimentellen Ergebnisse liefern eine Datenbasis, die zur Validierung numerischer Modelle bereitsteht. Bezüglich der intendierten Brennstoffschichtung (Stratifizierung) in den Flammen konnten relevante Ableitungen für den Ablauf der Verbrennung in derartigen Flammen gezogen werden.

Der theoretische Hintergrund der  $\text{H}_2$ -Kodotierung und der Stratifizierung auf die Flammenstruktur wurde anhand von numerischen 1-D-Simulationen besprochen. Im weiteren Verlauf der Arbeit wurden die verwendeten messtechnischen Methoden vorgestellt. Die wichtigste eingesetzte Messtechnik war die kombinierte Raman-/Rayleigh-/LIF-Spektroskopie. Das Vorgehen zur Auswertung der Messdaten wurde besprochen und dabei die maßgeblichen Schritte hinsichtlich ihres Fehlers bewertet.

Die Prüfstände, mit welchen die Messdaten akquiriert wurden, wurden detailliert dargestellt. Aufgrund der Limitierung der Fähigkeiten der vorhandenen Detektionsseite des Prüfstandes wurde eine Weiterentwicklung des Spektrometers vorgenommen. Dazu wurde ein neues Transmissionsspektrometer design und aufgebaut. Es reduziert die Belichtungszeit um den Faktor 3,8 auf  $3,4 \mu\text{s}$  (FWHM), erhöht die spektrale und räumliche Auflösung und bietet die Voraussetzung, komplexere Brennstoffe durch den Einbau eines zusätzlichen Gitters zu untersuchen. Die Vermessung von Flammen mit höherer Lumineszenz ist zudem möglich.

### **$\text{H}_2$ -Kodotierung in zwei laminaren Flammen**

Die Flammen zweier laminarer Brenner wurden experimentell untersucht. Die Streckungsrate als Unterscheidungsparameter der Flammen ist null in der ebenen Flamme und gering negativ in der kegelförmigen Bunsenflamme. Die stärkeren Diffusionseffekte durch  $\text{H}_2$ -Zugabe werden in der ebenen Flamme sehr genau durch 1-D-Simulationen vorhergesagt. In der negativ gestreckten Flamme tritt im Unterschied dazu zu Beginn der Flammenfront eine Anreicherung der Brennstoffe  $\text{CH}_4$  und  $\text{H}_2$  auf. Dies geschieht aufgrund der reduzierten Verbrauchsgeschwindigkeit. Je höher die  $\text{H}_2$ -Kodotierung, desto stärker ausgeprägt ist der Effekt. Das erhöhte C/H-Verhältnis im Temperaturbereich von  $500 \text{ K} < T < 1600 \text{ K}$

lässt darauf schließen, dass  $\text{H}_2$  aus dem Bereich des angereicherten Brennstoffes schneller wegdiffundieren kann als  $\text{CH}_4$ .

Das bedeutet, dass bereits eine geringe negative Streckung eine erhebliche Abweichung der Speziesverläufe und damit der Flammenstruktur verursacht. Da Flammenelemente mit negativer Streckung auch in einer turbulenten Flamme auftreten können, liefert diese Untersuchung relevante Erkenntnisse für die Vermessung turbulenter Flammen mit  $\text{H}_2$ -Kodotierung.

## **$\text{H}_2$ -Kodotierung in vier turbulenten Flammen**

Anschließend wurden vier turbulente Flammenkonfigurationen (MHF 5-8) am stratifizierten Brenner vermessen. Sie umfassten vorgemischte und stratifizierte Fälle, einschließlich einer Schichtung aus brennstoffreichem neben magerem Gemisch. Sie wurden zunächst nach makroskopischen Kriterien, wie Öffnungswinkel des Flammenkegels, Kegelbreite und Höhe der Reaktionszone, bewertet. Die genaue Charakterisierung erfolgte dann anhand von Radialprofilen der Skalarwerten (chemische Spezieskonzentrationen und Temperaturen) in acht axialen Höhen über dem Brenneraustritt. Diese umfassende Datenbasis kann zur Validierung numerischer Simulationen dieser Flammen herangezogen werden. Sie lieferte die Grundlage zur Auswahl geeigneter Punkte in den Flammen, an denen die Mikrostruktur untersucht werden konnte.

Ein wichtiger Einflussfaktor auf die Flammenform ist die größere Geschwindigkeit in Ring 2 ( $v = 15 \text{ m/s}$ ) in den Fällen MHF 6 und 8. Die konvektive Geschwindigkeit lässt den Flammenkegel schmäler werden und überwiegt Effekte der Turbulenz auf die Brenngeschwindigkeit. Dementsprechend ist die Orientierung der Flammenfront am Schnittpunkt von Mischungsschicht und *flame brush* in MHF 6 und 8 häufiger parallel zur  $z$ -Achse (d. h. axialen Richtung des Brenners). Die vorgemischten Fälle MHF 5 und 6 stabilisieren sich axial tiefer und bei größeren Radien als die stratifizierten Fälle MHF 7 und 8. Ihre Breite ist um bis zu 25 % größer. Dies ist durch die präferentielle Diffusion von  $\text{H}_2$  verursacht. Sie findet erheblich vom Gemisch in Ring 1 in Richtung des verbrannten Pilotgases statt. Hier ändert sich dadurch die Gemischzusammensetzung, und die Brenngeschwindigkeit wird lokal reduziert. Der Effekt ist bei den stratifizierten Fällen, bedingt durch die höheren  $\text{H}_2$ -Konzentrationen in Ring 1, ausgeprägter. Die präferentielle Diffusion von  $\text{H}_2$  prägt makroskopisch das Erscheinungsbild der Flammen. Sie beeinflusst lokal die Stöchiometrie und hat damit erhebliche Auswirkungen auf die lokale Wärmefreisetzung. In der höchsten vermessenen Ebene ( $z = 100 \text{ mm}$ ) sind die vorgemischten Konfigurationen MHF 5 und 6 weitgehend ausgeprägt. Bei MHF 7 und 8 ist noch ein erheblicher Teil der chemischen Energie in  $\text{H}_2$  und dem Zwischenprodukt CO gespeichert.

Anhand der Radialprofile der Skalarwerte wurde die Lage der Mischungsschicht zwischen Ring 1 und 2 und des *flame brush* bestimmt. An dieser Stelle wurden hochaufgelöste Daten zur Untersuchung der Mikrostruktur der Flammen aufgenommen. Dies erfolgte durch Konditionierung der Messdaten auf das Äquivalenzverhältnis und die Stratifizierung.

Aus der Konditionierung auf das lokale Äquivalenzverhältnis ergibt sich für die Mikrostruktur der Flamme: Mit Ausnahme von  $\text{H}_2$  sind die Speziesverläufe im Temperatur-Zustandsraum hauptsächlich eine Funktion des lokalen Äquivalenzverhältnisses. Die  $\text{H}_2$ -Massenbrüche weichen im brennstoffreichen Gemisch ( $\phi > 1$ ) im Vergleich zu entsprechenden laminaren 1-D-Rechnungen zu höheren Werten ab. Dies geschieht durch Diffusion von  $\text{H}_2$  und mit höherer Wahrscheinlichkeit, wenn zwei Voraussetzungen erfüllt sind: 1. Es müssen in der nahen Umgebung ( $\pm 500 \mu\text{m}$ ) Bereiche mit einem höheren Äquivalenzverhältnis



---

vorliegen. Nur dann existiert dort eine höhere  $\text{H}_2$ -Konzentration als Ursprungsort für  $\text{H}_2$ . 2. Es muss dort ein Mangel an  $\text{O}_2$  herrschen, da sonst  $\text{H}_2$  direkt vollständig reagieren würde.

Anschließend wurden die Messdaten der MHF 5-8 doppelt konditioniert: auf das Äquivalenzverhältnis ( $\phi$ ) und die lokale Stratifizierung ( $\Delta\phi/\Delta T$ ). Der Verlauf des  $\text{H}_2$ -Massenbruchs ist im Temperatur-Zustandsraum als einziger sensitiv auf den Grad der Stratifizierung. Je größer die Stratifizierung ( $\Delta\phi/\Delta T$ ), desto stärker sind die  $\text{H}_2$ -Massenbrüche im mittleren Temperaturbereich ( $400\text{ K} < T < 1700\text{ K}$ ) erhöht. Dies geschieht bei allen Äquivalenzverhältnissen. Die Stratifizierung in den MHF-Konfigurationen ist symmetrisch um ihr Maximum bei nur moderaten Stratifizierungslevels von  $\Delta\phi/\Delta T \approx 1,5 \cdot 10^{-4} (1/\text{K})$  verteilt. Ohne Konditionierung auf die lokale Stratifizierung ist kein Einfluss auf den  $\text{H}_2$ -Speziesverlauf im Temperatur-Zustandsraum erkennbar. Liegt in der nächsten Umgebung ein höheres Äquivalenzverhältnisses vor, so ist die „Basislinie“, bei der keine Stratifizierung vorliegt, zu höheren  $\text{H}_2$ -Massenbrüchen verschoben.

Mit Ausnahme von  $\text{H}_2$  ist der thermokinetische Zustand in den untersuchten Flammen durch das lokale Äquivalenzverhältnis weitestgehend beschreibbar. Der  $\text{H}_2$ -Speziesverlauf dagegen ist zusätzlich eine Funktion des Äquivalenzverhältnisses der nächsten Umgebung und der lokalen Stratifizierung. Die gezeigten Unterschiede in der Mikrostruktur erscheinen klein. Dennoch beeinflussen sie durch ihre globalen Auswirkungen makroskopisch das Erscheinungsbild der Flammen.

## Ausblick

Aus den in dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnissen und Erfahrungen lassen sich zukünftige Aktivitäten ableiten. Um das realitätsnahe Einsatzspektrum der  $\text{H}_2$ -Kodotierung zu bewerten, können Betriebszustände mit höheren Reynolds-Zahlen untersucht werden. Die schnelle Diffusion von  $\text{H}_2$  bietet das Potential, sehr magere Mischungen zu verbrennen, besonders wenn gleichzeitig benachbarte brennstoffreiche Bereiche vorliegen. Die räumliche Reichweite dieser Diffusionseffekte und deren Einfluss auf die Flammenstruktur erscheinen von technischer Relevanz, da der großflächige Einsatz von  $\text{H}_2$ -Beimischung zu Methan (z. B. im Erdgasnetz) realistisch ist. Zudem ist er wissenschaftlich relevant, um die Bedeutung präferentieller Diffusion bei sehr starker Turbulenz zu quantifizieren.

Mit dem verwendeten stratifizierten Brenner konnte nur eine moderate Stratifizierung erreicht werden. Da sich zeigte, dass der  $\text{H}_2$ -Verlauf im Temperatur-Zustandsdiagramm sehr sensitiv auf die Stratifizierung war, ist davon auszugehen, dass bei höheren Stratifizierungslevels eine noch größere  $\text{H}_2$ -Erhöhung erreicht werden könnte. Diese bietet das Potential, Gemische unterhalb der Brennbarkeitsgrenzen umzusetzen.

Anlagentechnisch ist das neu entwickelte Spektrometer dafür vorbereitet, weitere Transmissionsgitter aufzunehmen. Damit verfügt es über die Voraussetzung, die Verbrennung komplexer regenerativer Brennstoffe auf Ebene der Flammenstruktur zu untersuchen.



# Anhang A

## Darstellung des neu gebauten Transmissionsspektrometers

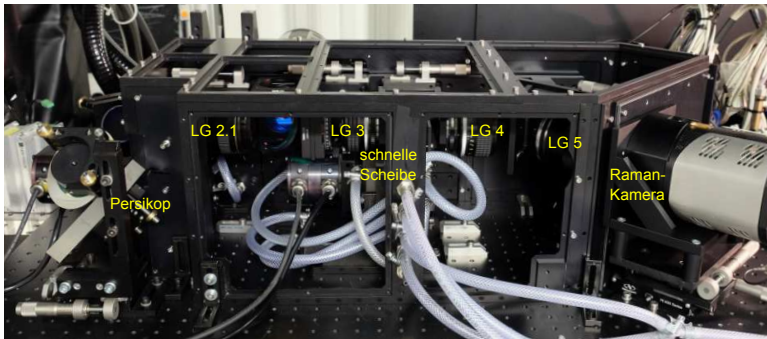
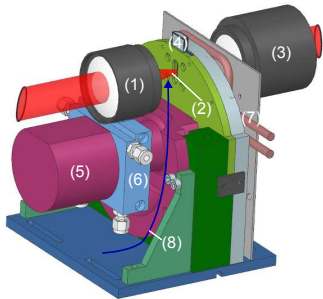
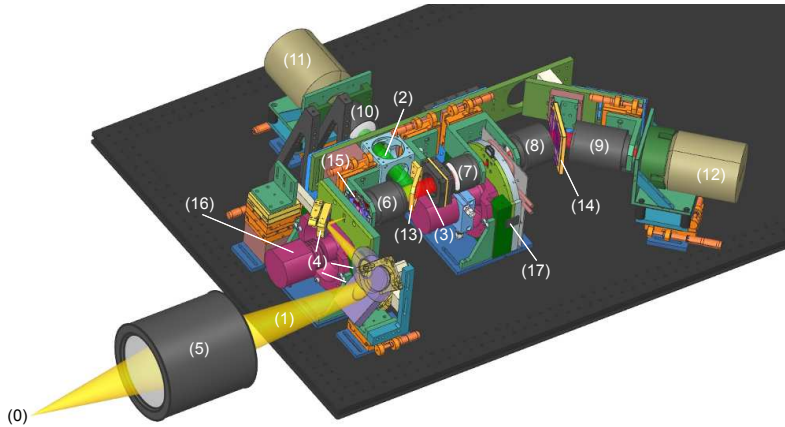


Abbildung A.1: Fotografie des aufgebauten Spektrometers in der Seitenansicht.



Nummer	Komponente
1	Linsengruppe 3
2	fokussierter Strahlengang
3	Linsengruppe 4
4	stationärer Spalt
5	Motorgehäuse
6	Kühlmanschette Motor
7	Kühlplatte Deckel Scheibe
8	Stromlinie Kühlluft

Abbildung A.2: CAD-Modell der schnellen Scheibe des Spektrometers. Die wichtigsten Komponenten sind in der Tabelle benannt.



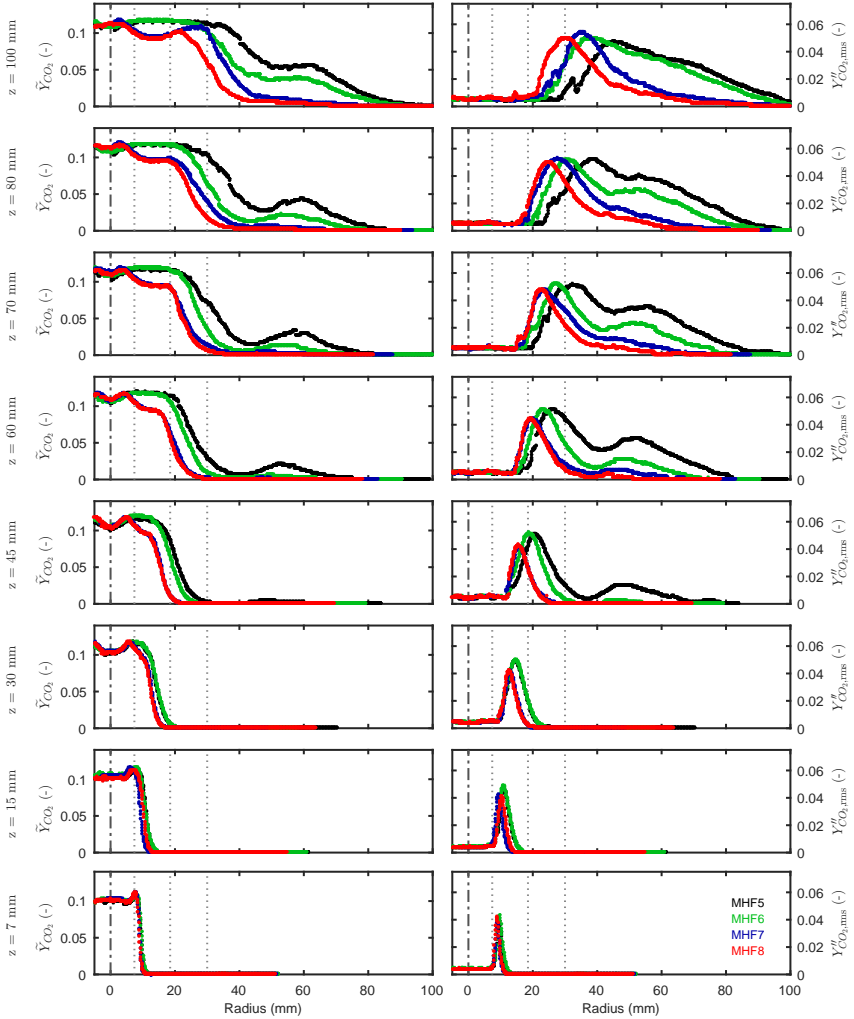
Nummer	Komponente
0	Probevolumen
1	Strahlengang vom Probevolumen (0) bis zum Strahlteiler (13)
2	Strahlengang vom Strahlteiler (13) bis zur Rayleigh-Kamera (11)
3	Strahlengang vom Strahlteiler (13) bis zur Raman-Kamera (12)
4	drei Periskopspiegel
5	Linsengruppe 1 (Achromat)
6	Linsengruppe 2.1
7	Linsengruppe 3
8	Linsengruppe 4
9	Linsengruppe 5
10	Linsengruppe 2.2
11	Rayleigh-Kamera
12	Raman-Kamera
13	Strahlteiler
14	Transmissionsgitter
15	Irisshutter
16	langsame Scheibe im Gehäuse mit Motor
17	schnelle Scheibe im Gehäuse mit Motor

**Abbildung A.3:** CAD-Modell des Spektrometers ohne Gehäuse. Die wichtigsten Komponenten sind in der Tabelle benannt.

## Anhang B

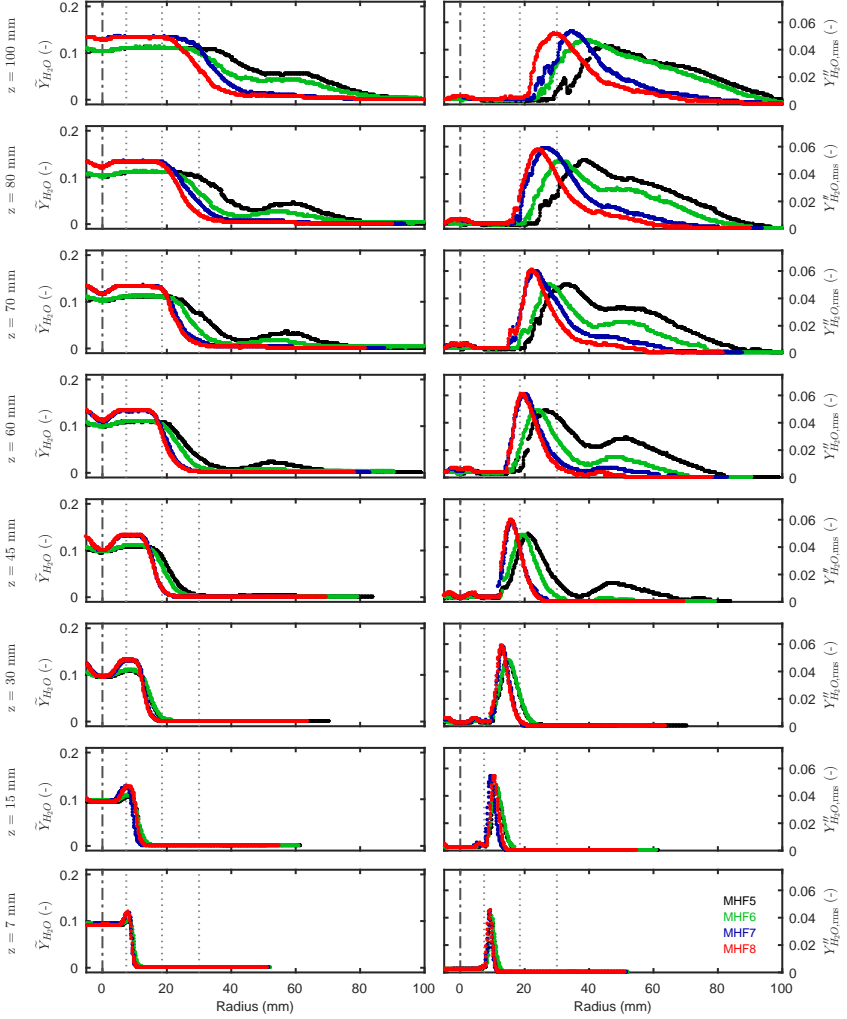
### Radialprofile der Massenbrüche von $\text{CO}_2$ und $\text{H}_2\text{O}$ in MHF 5-8

# $\text{CO}_2$ -Massenbruch



**Abbildung B.1:** Radialprofile des Massenbruches von  $\text{CO}_2$  der Flammen MHF 5-8 in acht verschiedenen Höhen  $z$  über dem Brenner. Links: Favre-Mittel. Rechts: RMS der Favre-Fluktuationen. Die schwarze Symmetrielinie markiert die Mitte des Brenners, die grau gepunkteten Linien die radialen Positionen der Ringe des Brenners.

## H<sub>2</sub>O-Massenbruch



**Abbildung B.2:** Radialprofile des Massenbruches von H<sub>2</sub>O der Flammen MHF 5-8 in acht verschiedenen Höhen  $z$  über dem Brenner. Links: Favre-Mittel. Rechts: RMS der Favre-Fluktuationen. Die schwarze Symmetrielinie markiert die Mitte des Brenners, die grau gepunkteten Linien die radialen Positionen der Ringe des Brenners.





# Literaturverzeichnis

- [1] *World Energy Statistics 2016*. World Energy Statistics. OECD Publishing, Paris, 2016.
- [2] ACHLEITNER, E., H. BÄCKER und A. FUNAIOLI: *Direct Injection Systems for Otto Engines*. In: *SAE World Congress & Exhibition*, SAE Technical Paper Series. SAE International 400 Commonwealth Drive, Warrendale, PA, United States, 2007.
- [3] ALKIDAS, ALEX C.: *Combustion advancements in gasoline engines*. Energy Conversion and Management, 48(11):2751–2761, 2007.
- [4] ANSELMO-FILHO, P., S. HOCHGREB, R. S. BARLOW und R. S. CANT: *Experimental measurements of geometric properties of turbulent stratified flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 32(2):1763–1770, 2009.
- [5] ATKINS, PETER WILLIAM und RONALD SAMUEL FRIEDMAN: *Molecular quantum mechanics*. Oxford Univ. Press, Oxford, 5. ed. Auflage, 2011.
- [6] BANWELL, COLIN N., ELAINE M. McCASH und WELF A. KREINER: *Molekülspektroskopie: Ein Grundkurs*. Oldenbourg, München, 1999.
- [7] BARLOW, R. S., G.-H. WANG, P. ANSELMO-FILHO, M. S. SWEENEY und S. HOCHGREB: *Application of Raman/Rayleigh/LIF diagnostics in turbulent stratified flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 32(1):945–953, 2009.
- [8] BARLOW, ROBERT S., MATTHEW J. DUNN und GAETANO MAGNOTTI: *Preferential transport effects in premixed bluff-body stabilized CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> flames*. Combustion and Flame, 162(3):727–735, 2015.
- [9] BARLOW R.: *Private Kommunikation*.
- [10] BELL, J. und R. METHA: *Contraction design for small low-speed wind tunnels*.
- [11] BELL, JOHN B., ROBERT K. CHENG, MARCUS S. DAY und IAN G. SHEPHERD: *Numerical simulation of Lewis number effects on lean premixed turbulent flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 31(1):1309–1317, 2007.
- [12] BERGMANN, V., W. MEIER, D. WOLFF und W. STRICKER: *Application of spontaneous Raman and Rayleigh scattering and 2D LIF for the characterization of a turbulent CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> jet diffusion flame*. Applied Physics B: Lasers and Optics, 66(4):489–502, 1998.
- [13] BILGER, R. W., S. H. STARNER und R. J. KEE: *On reduced mechanisms for methane/air combustion in nonpremixed flames: Air combustion in nonpremixed flames*. Combustion and Flame, 80(2):135–149, 1990.
- [14] BOREMAN, G. D.: *Modulation transfer function in optical & electro-optical systems: "SPIE digital library"*, Band v. TT 52 der Reihe *Tutorial texts in optical engineering*. SPIE, Bellingham, Wash. (1000 20th St. Bellingham WA 98225-6705 USA), 2001.
- [15] BORGHİ, R.: *On the Structure and Morphology of Turbulent Premixed Flames*. In: CASCI, CORRADO und CLAUDIO BRUNO (Herausgeber): *Recent Advances in the Aerospace Sciences*, Seiten 117–138. Springer US, Boston, MA, 1985.
- [16] BP: *P.L.C.: BP Energy Outlook 2017 edition: Outlook to 2035*.
- [17] CHEN, YUNG-CHENG und ROBERT W. BILGER: *Experimental investigation of three-dimensional flame-front structure in premixed turbulent combustion*. Combustion and Flame, 138(1-2):155–174, 2004.
- [18] CLARKE, C. F.: *Theory of Laminar Flames*. By J. D. BUCKMASTER and G. S. S. LUDFORD. Cambridge University Press, 1982. 266 pp. £ 25.00. Journal of Fluid Mechanics, 134(1):466, 1983.

- [19] DAILY, JOHN W.: *Laser induced fluorescence spectroscopy in flames*. Progress in Energy and Combustion Science, 23(2):133–199, 1997.
- [20] DAY, MARC, JOHN BELL, PEER-TIMO BREMER, VALERIO PASCUCCI, VINCE BECKNER und MICHAEL LIJEWSKI: *Turbulence effects on cellular burning structures in lean premixed hydrogen flames*. Combustion and Flame, 156(5):1035–1045, 2009.
- [21] DEMTRÖDER, W.: *Laserspektroskopie*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2000.
- [22] DREIZLER ANDREAS, GEYER DIRK: *Experimentelle Untersuchung thermochemischer Zustände in Ethanolflammen: DFG Antrag Kennzeichen: 374/17-1 bzw. 2523/2-1*.
- [23] DUNN M.J. , BARLOW R. S.: *A wavelet oversampling technique for high resolution scalar measurements*. In Preparation, 2017.
- [24] ECKBRETH, A. C.: *Laser diagnostics for combustion temperature and species*. Gordon and Breach Publishers, Amsterdam and The Netherlands, 2 Auflage, 1996.
- [25] FUEST, F., R. S. BARLOW, D. GEYER, F. SEFFRIN und A. DREIZLER: *A hybrid method for data evaluation in 1-D Raman spectroscopy*. Proceedings of the Combustion Institute, 33(1):815–822, 2011.
- [26] FUEST, FREDERIK, ROBERT S. BARLOW, JYH-YUAN CHEN und ANDREAS DREIZLER: *Raman/Rayleigh scattering and CO-LIF measurements in laminar and turbulent jet flames of dimethyl ether*. Combustion and Flame, 159(8):2533–2562, 2012.
- [27] FUEST FREDERIK: *1D Raman/Rayleigh-scattering and CO-LIF measurements in laminar and turbulent jet flames of dimethyl ether using a hybrid data reduction strategy*. Dissertation, TU Darmstadt, Darmstadt, 2011.
- [28] GALIZZI, C. und D. ESCUDIÉ: *Experimental analysis of an oblique laminar flame front propagating in a stratified flow*. Combustion and Flame, 145(3):621–634, 2006.
- [29] GAYDON, A. G.: *The Spectroscopy of Flames*. Springer, Dordrecht, Second Edition Auflage, 1974.
- [30] GEYER, DIRK: *1D-Raman/Rayleigh experiments in a turbulent opposed-jet: Techn. Univ., Diss.–Darmstadt, 2004*, Band 533 der Reihe Fortschritt-Berichte VDI Reihe 6, Energietechnik. VDI-Verl., Düsseldorf, Als Ms. gedr Auflage, 2005.
- [31] GOODWIN, D. MOFFAT, H. und R. SPETH: *Cantera: An Object-Oriented Software Toolkit For Chemical Kinetics, Thermodynamics, And Transport Processes. Version 2.3.0*, 2017.
- [32] GREGOR, MARK AUREL und ANDREAS DREIZLER: *A quasi-adiabatic laminar flat flame burner for high temperature calibration*. Measurement Science and Technology, 20(6):65402, 2009.
- [33] GREGORY P. SMITH, DAVID M. GOLDEN, MICHAEL FRENKLACH, NIGEL W. MORIARTY, BORIS EITENEER, MIKHAIL GOLDENBERG, C. THOMAS BOWMAN, RONALD K. HANSON, SOONHO SONG, WILLIAM C. GARDINER, JR., VITALI V. LISSIANSKI, AND ZHIWEI QIN: [http://www.me.berkeley.edu/gri\\_mech/](http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/).
- [34] HECHT, EUGENE: *Optik*. Oldenbourg, München, 3., vollst. überarb. Aufl. Auflage, 2001.
- [35] JACKSON, GREGORY S., ROXANNE SAI, JOSEPH M. PLAIA, CHRISTOPHER M. BOGGS und KENNETH T. KIGER: *Influence of H2 on the response of lean premixed CH4 flames to high strained flows*. Combustion and Flame, 132(3):503–511, 2003.
- [36] JÄHNE, BERND: *Digital Image Processing*. Springer-Verlag, s.l., 1. Aufl. Auflage, 2005.
- [37] KAMAL, M. MUSTAFA, ROBERT S. BARLOW und SIMONE HOCHGREB: *Conditional analysis of turbulent premixed and stratified flames on local equivalence ratio and progress of reaction*. Combustion and Flame, 162(10):3896–3913, 2015.
- [38] KAMAL, M. MUSTAFA, ROBERT S. BARLOW und SIMONE HOCHGREB: *Scalar structure of turbulent stratified swirl flames conditioned on local equivalence ratio*. Combustion and Flame, 166:76–79, 2016.
- [39] KANG, TAEKYU und DIMITRIOS C. KYRITSIS: *Methane flame propagation in compositionally stratified gases*. Combustion Science and Technology, 177(11):2191–2210, 2005.

- 
- [40] KANG, TAEKYU und DIMITRIOS C. KYRITSIS: *Departure from quasi-homogeneity during laminar flame propagation in lean, compositionally stratified methane-air mixtures*. Proceedings of the Combustion Institute, 31(1):1075–1083, 2007.
- [41] KANG, TAEKYU und DIMITRIOS C. KYRITSIS: *Phenomenology of methane flame propagation into compositionally stratified, gradually richer mixtures*. Proceedings of the Combustion Institute, 32(1):979–985, 2009.
- [42] KARPETIS, ADONIOS N. und ROBERT S. BARLOW: *Measurements of flame orientation and scalar dissipation in turbulent partially premixed methane flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 30(1):665–672, 2005.
- [43] KARPETIS, ADONIOS N., THOMAS B. SETTERSTEN, ROBERT W. SCHEFFER und ROBERT S. BARLOW: *Laser imaging system for determination of three-dimensional scalar gradients in turbulent flames*. Optics Letters, 29(4):355, 2004.
- [44] KIM, S. B., R. M. HAMMAKER und W. G. FATELEY: *Calibrating Raman Spectrometers Using a Neon Lamp*. Applied Spectroscopy, 40(3):412–415, 1986.
- [45] KOHSE-HÖINGHAUS, KATHARINA und JAY BARKER JEFFRIES (Herausgeber): *Applied combustion diagnostics*. Combustion. Taylor & Francis, New York, 2002.
- [46] KOJIMA, JUN und QUANG-VIET NGUYEN: *Laser pulse-stretching with multiple optical ring cavities*. Applied Optics, 41(30):6360, 2002.
- [47] KORTE MAXIMILIAN: *Optimization of the Control System of a High-Velocity rotating Wheel and Balancing of the Device*. Bachelorarbeit, TU Darmstadt, Darmstadt, 2016.
- [48] KUENNE, G., F. SEFFRIN, F. FUEST, T. STAHLER, A. KETELHEUN, D. GEYER, J. JANICKA und A. DREIZLER: *Experimental and numerical analysis of a lean premixed stratified burner using 1D Raman/Rayleigh scattering and large eddy simulation*. Combustion and Flame, 159(8):2669–2689, 2012.
- [49] LAMMERS, F.A und L.P.H DE GOEY: *The influence of gas radiation on the temperature decrease above a burner with a flat porous inert surface*. Combustion and Flame, 136(4):533–547, 2004.
- [50] LAW, C.K und C.J SUNG: *Structure, aerodynamics, and geometry of premixed flamelets*. Progress in Energy and Combustion Science, 26(4-6):459–505, 2000.
- [51] LIEUWEN, TIMOTHY C. und VIGOR YANG: *Gas turbine emissions*, Band 38 der Reihe *Cambridge aerospace series*. Cambridge University Press, Cambridge, 2013.
- [52] LIPATNIKOV, A.N und J. CHOMIAK: *Molecular transport effects on turbulent flame propagation and structure*. Progress in Energy and Combustion Science, 31(1):1–73, 2005.
- [53] LIPATNIKOV, ANDREI: *Fundamentals of premixed turbulent combustion*. CRC Press, Boca Raton, Fla., 2013.
- [54] LIU, FENGSHAN und ÖMER L. GÜLDER: *Effects of H<sub>2</sub> and H preferential diffusion and unity Lewis number on superadiabatic flame temperatures in rich premixed methane flames*. Combustion and Flame, 143(3):264–281, 2005.
- [55] LIU, FENGSHAN und ÖMER L. GÜLDER: *Effects of Pressure and Preheat on Super-Adiabatic Flame Temperatures in Rich Premixed Methane/Air Flames*. Combustion Science and Technology, 180(3):437–452, 2008.
- [56] LONGWELL, JOHN P., EDWARD E. FROST und MALCOLM A. WEISS: *Flame Stability in Bluff Body Recirculation Zones*. Industrial & Engineering Chemistry, 45(8):1629–1633, 1953.
- [57] MAGNOTTI, G., D. GEYER und R. S. BARLOW: *Interference free spontaneous Raman spectroscopy for measurements in rich hydrocarbon flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 35(3):3765–3772, 2015.
- [58] MAGNOTTI, GAETANO und ROBERT S. BARLOW: *Effects of high shear on the structure and thickness of turbulent premixed methane/air flames stabilized on a bluff-body burner*. Combustion and Flame, 162(1):100–114, 2015.

- [59] MALLAT, STÉPHANE G.: *A wavelet tour of signal processing: The Sparse way*. Elsevier /Academic Press, Amsterdam and Boston, Sparse ed. Auflage, 2009.
- [60] MANN MARKUS: *Laserbasierte Untersuchung der Flamme-Wand-Interaktion*. Dissertation, TU Darmstadt, Darmstadt, 2013.
- [61] MANSOUR A.: *ASME Turbo Expo: Power for land, sea & air*. ASME, [New York], 2005.
- [62] MARZOUK, Y. M., A. F. GHONIEM und H. N. NAJM: *Dynamic response of strained premixed flames to equivalence ratio gradients*. Proceedings of the Combustion Institute, 28(2):1859–1866, 2000.
- [63] MATALON, M.: *On Flame Stretch*. Combustion Science and Technology, 31(3-4):169–181, 2007.
- [64] MEIER, C.: *Konstruktion und Test eines Transmissionsspektrometers*. Studienarbeit, TU Darmstadt, Darmstadt, 2005.
- [65] MEIER, W., R.S BARLOW, Y.-L CHEN und J.-Y CHEN: *Raman/Rayleigh/LIF measurements in a turbulent CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> jet diffusion flame: experimental techniques and turbulence–chemistry interaction*. Combustion and Flame, 123(3):326–343, 2000.
- [66] MEUB H.: *Aufbau, Inbetriebnahme und Verwendung eines schnellen mechanischen Verschlusses zur Realisierung kurzer Belichtungszeiten einer CCD-Kamera*. Studienarbeit, TU Darmstadt, Darmstadt, 2002.
- [67] NAMBULLY, SURESH, PASCALE DOMINGO, VINCENT MOUREAU und LUC VERVISH: *A filtered-laminar-flame PDF sub-grid-scale closure for LES of premixed turbulent flames: II. Application to a stratified bluff-body burner*. Combustion and Flame, 161(7):1775–1791, 2014.
- [68] NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS AND TECHNOLOGY (Herausgeber): *NIST Chemistry WebBook, NIST Standard Reference: UV/Visible Spectra*. Gaithersburg MD, 20899.
- [69] NICKOLAUS, D. A.: *ASME Turbo Expo 2002: June 3 - 6, 2002 Amsterdam, The Netherland ; [proceedings]*. American Soc. of Mechanical Engineers, [New York, NY], 2002.
- [70] ONNO FLORISSON: *Naturally preparing for the hydrogen economy by using the existing natural gas system as catalyst*. 2010.
- [71] PASQUIER, N., B. LECORDIER, M. TRINITÉ und A. CESSOU: *An experimental investigation of flame propagation through a turbulent stratified mixture*. Proceedings of the Combustion Institute, 31(1):1567–1574, 2007.
- [72] PETERS, NORBERT: *Turbulent Combustion*. Cambridge University Press, Cambridge, 2000.
- [73] PFEIFFER CHRISTIAN, DIXEL BENJAMIN: *Entwicklung einer thermisch stabilen Halterung für eine Detektionsoptik*. Fachaufsatz Masterseminar, Hochschule Darmstadt, TU Darmstadt, Darmstadt, 2015.
- [74] POINSOT, THIERRY und DENIS VEYNANTE: *Theoretical and numerical combustion*. CNRS, Toulouse, 3 Auflage, ca. 2011.
- [75] POPE, STEPHEN B.: *Turbulent flows*. Cambridge Univ. Press, Cambridge, 12. print Auflage, 2015.
- [76] PRÜFERT, M.: *Investigation of a Reacting Flow Field and Scalar Field by Advanced Laser Diagnostics*. Diplomarbeit, Lund Institute of Technology, Lund, 2006.
- [77] RANALLI A. AND STRAKEY P. (Herausgeber): *Spontaneous Raman scattering measurements and CFD simulations of major species and temperature in a turbulent dilute hydrogen diffusion flame*.
- [78] RENOU, B., E. SAMSON und A. BOUKHALFA: *An experimental study of freely propagating turbulent propane/air flames in stratified inhomogeneous mixtures*. Combustion Science and Technology, 176(11):1867–1890, 2004.
- [79] ROBIN, VINCENT, ARNAUD MURA, MICHEL CHAMPION, OLIVIER DEGARDIN, BRUNO RENOU und MOURAD BOUKHALFA: *Experimental and numerical analysis of stratified turbulent V-shaped flames*. Combustion and Flame, 153(1-2):288–315, 2008.

- 
- [80] SATEU KEMENI RUBAIN AURELIEN: *Regelung langsam oder sehr schnell laufender rotierender Teile in la-serdiagnostische Applikationen mittels LabVIEW*. Masterarbeit, Hochschule Darmstadt, TU Darmstadt, Darmstadt, 2015.
- [81] SCHEFER, R.W, D.M WICKSALL und A.K AGRAWAL: *Combustion of hydrogen-enriched methane in a lean premixed swirl-stabilized burner*. Proceedings of the Combustion Institute, 29(1):843–851, 2002.
- [82] SCHLICHTING, HERMANN und KLAUS GERSTEN: *Boundary-Layer Theory*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg and s.l., 9th ed. 2017 Auflage, 2017.
- [83] SCHNEIDER, S., D. GEYER und A. DREIZLER: *Verbrennung und Feuerung: 27. Deutscher Flammentag, Clausthal-Zellerfeld, 16. und 17. September 2015: Raman/Rayleigh Spektroskopie in vorgemischten Methanflammen mit Wasserstoffaddition*, Band 2267 der Reihe VDI-Berichte. VDI-Verl., Düsseldorf, Nichtred. Ms.-Dr Auflage, 2015.
- [84] SCHULTZ-GRUNOW, F.: *Der Reibungswiderstand rotierender Scheiben in Gehäusen*. ZAMM - Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Mechanik, 15(4):191–204, 1935.
- [85] SEFFRIN, F., F. FUEST, D. GEYER und A. DREIZLER: *Flow field studies of a new series of turbulent premixed stratified flames*. Combustion and Flame, 157(2):384–396, 2010.
- [86] SEFFRIN, FLORIAN: *Geschwindigkeits- und Skalarfeld-Charakterisierung turbulenter stratifizierter Vormischflammen: Dissertation*. Cuvillier, Göttingen, 1 Auflage, 2011.
- [87] SESHADRI, K. und F. A. WILLIAMS: *Laminar flow between parallel plates with injection of a reactant at high reynolds number*. International Journal of Heat and Mass Transfer, 21(2):251–253, 1978.
- [88] SHY, S. S., Y. C. CHEN, C. H. YANG, C. C. LIU und C. M. HUANG: *Effects of H<sub>2</sub> or CO<sub>2</sub> addition, equivalence ratio, and turbulent straining on turbulent burning velocities for lean premixed methane combustion*. Combustion and Flame, 153(4):510–524, 2008.
- [89] SMITH, WARREN J.: *Optical engineering: The design of optical systems*. McGraw-Hill, New York, 4. ed. Auflage, 2008.
- [90] SPURK, JOSEPH und NURI AKSEL: *Strömungslehre: Einführung in die Theorie der Strömungen*. Springer-Lehrbuch. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 8. Aufl. Auflage, 2010.
- [91] STAHLER, THABO: *Statistische Analyse von Skalarwerten einer turbulenten Vormischflamme*. Dissertation, 2015.
- [92] STAHLER, THABO, DIRK GEYER, GAETANO MAGNOTTI, PHILIPP TRUNK, MATTHEW J. DUNN, ROBERT S. BARLOW und ANDREAS DREIZLER: *Multiple conditioned analysis of the turbulent stratified flame A*. Proceedings of the Combustion Institute, 2016.
- [93] STOCKER, THOMAS (Herausgeber): *Climate change 2013: The physical science basis : Working Group I contribution to the Fifth assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, 2014.
- [94] SWEENEY, M. S., S. HOCHGREB und R. S. BARLOW: *The structure of premixed and stratified low turbulence flames*. Combustion and Flame, 158(5):935–948, 2011.
- [95] SWEENEY, M. S., S. HOCHGREB, M. J. DUNN und R. S. BARLOW: *A comparative analysis of flame surface density metrics in premixed and stratified flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 33(1):1419–1427, 2011.
- [96] SWEENEY, MARK S., SIMONE HOCHGREB, MATTHEW J. DUNN und ROBERT S. BARLOW: *The structure of turbulent stratified and premixed methane/air flames I: Non-swirling flows*. Combustion and Flame, 159(9):2896–2911, 2012.
- [97] SWEENEY, MARK S., SIMONE HOCHGREB, MATTHEW J. DUNN und ROBERT S. BARLOW: *The structure of turbulent stratified and premixed methane/air flames II: Swirling flows*. Combustion and Flame, 159(9):2912–2929, 2012.
- [98] SWEENEY, MARK S., SIMONE HOCHGREB, MATTHEW J. DUNN und ROBERT S. BARLOW: *Multiply conditioned analyses of stratification in highly swirling methane/air flames*. Combustion and Flame, 160(2):322–334, 2013.

- [99] TRABOLD JOHANNES: *Bau eines Transmissionsspektrometers*. Masterthesis, Technische Universität, Darmstadt, 2015.
- [100] TRABOLD, SCHNEIDER, GEYER, WANG, BARLOW, DREIZLER: *A fast shuttered line imaging spectrometer for Raman/Rayleigh/ measurements in flames*. In Preparation, 2017.
- [101] TRAPP, CHARLES A., MARSHALL P. CADY und CARMEN GIUNTA: *Physikalische Chemie*. Wiley-VCH Verlag GmBH & Co. KGaA, Weinheim, Fünfte, neubearbeitete Auflage Auflage, 2013.
- [102] TRUNK PHILLIPP: *Zeitaufgelöste Verbrennungsdiagnostik zur Zeitaufgelöste Verbrennungsdiagnostik zur Untersuchung der Bewegung von Flammen in turbulenten Strömungsfeldern*. Dissertation, TU Darmstadt, Darmstadt, 2013.
- [103] WARNATZ, JÜRGEN, ULRICH MAAS und ROBERT W. DIBBLE: *Verbrennung: Physikalisch-chemische Grundlagen, Modellierung und Simulation, Experimente, Schadstoffentstehung ; mit 17 Tabellen*. Springer, Berlin [u.a.], 3 Auflage, 2001.
- [104] WEINKAUFF, J., M. GREIFENSTEIN, A. DREIZLER und B. BÖHM: *Time resolved three-dimensional flamebase imaging of a lifted jet flame by laser scanning*. Measurement Science and Technology, 26(10):105201, 2015.
- [105] WILLIAMS, FORMAN A.: *Combustion theory: The fundamental theory of chemically reacting flow systems*. Combustion science and engineering series. Perseus Books, Cambridge, Mass., 2. ed., [Nachdr.] Auflage, 2000.
- [106] YAN, JINYUE: *Handbook of Clean Energy Systems*. John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, UK, 2015.
- [107] YAO, MINGFA, ZHAOLEI ZHENG und HAIFENG LIU: *Progress and recent trends in homogeneous charge compression ignition (HCCI) engines*. Progress in Energy and Combustion Science, 35(5):398–437, 2009.
- [108] ZHANG, F., T. ZIRWES, P. HABISREUTHER und H. BOCKHORN: *Effect of unsteady stretching on the flame local dynamics*. Combustion and Flame, 175:170–179, 2017.
- [109] ZHANG, QINGGUO, SANTOSH J. SHANBHOUE und TIM LIEUWEN: *Dynamics of Premixed H<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub> Flames Under Near Blowoff Conditions*. Journal of Engineering for Gas Turbines and Power, 132(11):111502, 2010.
- [110] ZHAO, JUN: *Image Curvature Correction and Cosmic Removal for High-Throughput Dispersive Raman Spectroscopy*. Applied Spectroscopy, 57(11):1368–1375, 2003.